

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE*Faire avancer la sûreté nucléaire*

Le spectromètre thermophorétique circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

Edouard BRUGIERE
Décembre 2012
ISRN/IRSN/2013-161

Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols

Thèse

Présentée en vue de l'obtention du titre de

Docteur de l'Institut National des Sciences Appliquées de Rouen

Spécialité : **Energétique**

Par

Edouard BRUGIERE

LE SPECTROMETRE THERMOPHORETIQUE CIRCULAIRE, UN NOUVEL INSTRUMENT POUR MESURER LA THERMOPHORESE : APPLICATION AUX AGREGATS DE SUIES DE MORPHOLOGIE FRACTALE

Soutenue publiquement le 3 décembre 2012 devant le jury composé de :

- M. J.P. Borra**, Directeur de Recherche au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, UMR 8578 CNRS-Université Paris Sud, (Président)
 - M. P.L. Garcia-Ybarra**, Professeur à Universidad Nacional de Educación a Distancia, Madrid, Espagne (Rapporteur)
 - M. A. Weber**, Professeur à l'Université de Clausthal, Allemagne (Rapporteur)
 - M. A. Coppalle**, Professeur à l'INSA de Rouen, UMR 6614 CORIA, Rouen (Directeur de thèse)
 - M. D. Boulaud**, Directeur adjoint du Pôle Radioprotection - Environnement à l'IRSN (Examineur)
 - M. J. Yon**, Maître de conférence à l'INSA de Rouen, UMR 6614 CORIA, (Examineur)
 - M. F. Gensdarmes**, Chef du Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols à l'IRSN (Examineur)
 - M. F.X. Ouf**, Ingénieur de recherche à l'IRSN (Examineur)
-

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) et plus particulièrement au sein de Service du Confinement et de l'Aérodispersion des polluants (SCA), anciennement Service d'Etude et de Recherche en Aérodispersion des polluants et en Confinement (SERAC). Je tiens, à ce titre, à remercier Monsieur Jean-Claude Laborde, chef du SCA, pour m'avoir accueilli et permis de mener à bien ce travail de recherche.

Je tiens à remercier tout particulièrement ceux qui sont à l'origine de cette thèse et qui m'ont encadré durant ces 3 années, Monsieur Alexis Coppalle, professeur à l'Institut National des Sciences Appliquées de Rouen, Monsieur François Gensdarmes, responsable du Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols (LPMA), François-Xavier Ouf, ingénieur de recherche à l'IRSN et Jérôme Yon, maître de conférence à l'INSA de Rouen. Leur disponibilité, leurs encouragements, leurs conseils et leur patience m'ont permis de mener à bien ce travail dans des conditions particulièrement favorables, tant sur le plan scientifique qu'humain. Je vous remercie pour la confiance que vous m'avais accordée ainsi que tout ce que vous avez pu m'apprendre sur la physique des aérosols.

J'adresse mes remerciements à Monsieur Jean-Pascal Borra, responsable de l'équipe Décharge Electrique et Environnement du LPGP (SUPELEC), pour m'avoir fait l'honneur de présider ce jury de thèse.

J'ai également l'honneur de remercier Monsieur Pedro L. Garcia-Ybarra, professeur à l'Universidad Nacional de Educación a Distancia de Madrid et Monsieur Alfred Weber, professeur à l'Université de Clausthal (Allemagne) pour avoir accepté de faire partie de ce jury de thèse et d'en être les rapporteurs.

Mes remerciements vont également à Monsieur Denis Boulaud, directeur adjoint du Pôle Radioprotection - Environnement à l'IRSN pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de participer à ce jury de thèse. Je tiens également à lui témoigner toute ma gratitude pour ses conseils et son aide apporté durant cette thèse.

J'adresse mes sincères remerciement à l'ensemble du jury pour toutes les remarques et critiques constructives apportées ainsi que pour les encouragements et les félicitations.

Ma reconnaissance s'adresse également à Mesdames Catherine Drugeau, Geneviève Gomes et Messieurs Sébastien Pontreau, Sylvain Bondiguel, Philippe Sillon, Thomas Gelain et Pascal Lemaître pour leurs aides scientifiques, techniques ou administratives qui ont permis l'aboutissement de ce travail.

Que Madame Denise Stamose et Monsieur Jean-Christophe Sabroux trouvent ici l'expression de mes plus vifs remerciements pour leurs conseils et pour l'ensemble des échanges que nous avons eu durant ces années.

Je tiens, bien évidemment, à remercier tous mes collègues du service (Céline, Mélanie, Clothilde, Hortense, Nathalie, Audrey, Marwen, Sylvain(s), Lionel, Mickael(s), Sebastien, Benoît, Nicolas, Samuel, Simon, Zakaria, Soleiman, Pierre) qui ont rendu ces trois années de thèse agréables par les discussions sérieuses ou plus légères que nous avons pu avoir et pour les moments que nous avons partagé ensemble. Merci à tous pour votre disponibilité et pour votre bonne humeur et je n'oublierai pas les discussions animées sur des sujets divers et variés autour de la machine à café qui resteront de bons souvenirs.

Pour n'oublier personne, je souhaite adresser un grand merci à tous les membres du SCA, qui ont contribué à rendre ces années aussi agréable que l'on peut espérer.

SOMMAIRE

INTRODUCTION	15
1. ETAT DE L'ART DES CONNAISSANCES SUR LA THERMOPHORESE POUR DES PARTICULES SPHERIQUES ET NON SPHERIQUES	17
1.1. Importance de la thermophorèse par rapport aux autres mécanismes de dépôt.....	17
1.2. Principe de la thermophorèse.....	20
1.3. Continuité du milieu.....	21
1.4. Expression de la vitesse de thermophorèse pour une particule sphérique dans le domaine moléculaire $Kn \gg 1$	22
1.4.1. Le facteur d'accommodation de quantité de mouvement	23
1.4.2. Le facteur d'accommodation thermique	23
1.4.3. Expression de Waldmann	23
1.5. Expression de la vitesse de thermophorèse pour une particule sphérique dans le domaine continu $Kn \ll 1$ et de transition.....	24
1.5.1. Expression d'Epstein.....	24
1.5.2. Expression de Brock.....	26
1.5.3. Expression de Derjaguin	27
1.5.4. Expression de Talbot	27
1.5.5. Expression de Yamamoto	28
1.5.6. Expression de Beresnev	28
1.5.7. Expression de Bakanov	29
1.6. Coefficients liés aux facteurs d'accommodation.....	29
1.6.1. Le coefficient de glissement thermique C_s	29
1.6.2. Le coefficient C_t	30
1.6.3. Le coefficient C_m	30
1.7. Récapitulatif des différentes expressions de la vitesse de thermophorèse V_{th}	30
1.8. Influence de la conductivité thermique sur la vitesse de thermophorèse	32
1.9. Morphologie des particules de suies : les agrégats	38
1.9.1. Diamètre équivalent en volume	38
1.9.2. Diamètre de giration.....	38
1.9.3. Le facteur de forme dynamique	38

1.9.4. Diamètre de mobilité électrique	39
1.9.5. La dimension fractale D_f	39
1.9.6. Nombre de particules primaires	40
1.9.7. Diamètre des particules primaires	40
1.9.8. Synthèse.....	41
1.10. Influence de la forme d'une particule non-sphérique et de son orientation sur la vitesse de thermophorèse.....	42
1.10.1. Régime continu.....	42
1.10.2. Régime moléculaire.....	45
1.11. Influence des particules primaires sur la vitesse de thermophorèse d'un agrégat....	47
1.11.1. Travaux de Mackowski.....	47
1.11.2. Travaux de Suzuki et al. (2009).....	49
1.12. Orientation et déviation des agrégats soumis à un gradient de température	53
1.13. Démarche expérimentale pour l'étude du mécanisme de thermophorèse.....	55
1.13.1. Détermination de la force de thermophorèse	55
1.13.2. Détermination de la vitesse de thermophorèse	58
1.13.3. Détermination de l'efficacité de dépôt.....	59
1.14. Conclusion.....	61
2. CONCEPTION DU SPECTROMETRE THERMOPHORETIQUE CIRCULAIRE	63
2.1. Origine du SMTC : le SMEC	63
2.2. Conception du SpectroMètre thermophorétique Circulaire (SMTC)	65
2.3. Fonction de transfert du SMTC.....	71
2.4. Limites théoriques de fonctionnement	79
2.4.1. Ecoulement	79
2.4.2. Température	80
2.4.3. Taille des particules	81
2.5. Etude thermique du SMTC.....	82
2.5.1. Simulation thermo-aéraulique du SMTC	82
2.5.2. Profil de vitesse dans le SMTC	87
2.5.3. Profil de température dans le SMTC	90
2.5.4. Zone d'équilibre thermique dans le SMTC	93

2.6. Contrôle du profil de température par le biais d'une caméra thermique.....	95
2.7. Conclusion	96
3. QUALIFICATION DU SMTC ET TRAITEMENT DES DONNEES	98
3.1. Montage expérimental : principe général	98
3.1.1. <i>Principe général</i>	98
3.1.2. <i>Le générateur de billes de latex</i>	100
3.1.3. <i>Le générateur d'agrégats</i>	101
3.1.4. <i>Analyse des agrégats par microscopie électronique</i>	105
3.1.5. <i>Prélèvement et dilution de l'aérosol</i>	115
3.1.6. <i>Dispositif granulométrique et de classification des aérosols</i>	115
3.2. Calibration du SMTC en version électrique.....	116
3.3. Etablissement de la fonction de transfert thermique du SMTC.....	118
3.4. Interprétation de la fonction de transfert du SMTC.....	121
3.4.1. <i>Détermination de la vitesse effective de thermophorèse à partir de la fonction de transfert du SMTC</i>	121
3.4.2. <i>Influence de la température sur la taille des particules</i>	122
3.4.3. <i>Influence de l'humidité relative dans le SMTC</i>	126
3.4.4. <i>Incertitude sur la vitesse de thermophorèse des particules sélectionnées par le SMTC.</i>	127
3.5. Conclusion	127
4. PRESENTATION ET DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX	129
4.1. Mesure de la vitesse de thermophorèse pour des particules sphériques.....	129
4.1.1. <i>Comparaison des résultats avec les théories</i>	129
4.1.2. <i>Comparaison des résultats avec les résultats expérimentaux de la littérature</i>	133
4.1.3. <i>Conclusion</i>	135
4.2. Mesure de la vitesse de thermophorèse pour des agrégats de suies de combustion .	136
4.2.1. <i>Comparaison des résultats obtenus avec les billes de latex et les agrégats</i> .	136
4.2.2. <i>Influence du nombre de particules primaires de l'agrégat sur la vitesse de thermophorèse</i>	140
4.2.3. <i>Influence de la force de traînée sur la vitesse de thermophorèse d'un agrégat</i>	145
4.2.4. <i>Détermination de la porosité d'un agrégat</i>	148

4.2.5. <i>Influence de la conductivité thermique de l'agrégat sur sa vitesse de thermophorèse</i>	152
4.2.6. <i>Conclusion</i>	160
CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES	162
RÉFÉRENCES	166
<i>Annexe A</i>	171
<i>Annexe B</i>	172
<i>Annexe C</i>	173
<i>Annexe D</i>	174
<i>Annexe E</i>	175
<i>Annexe F</i>	180
<i>Annexe G</i>	181
<i>Annexe H</i>	184
<i>Annexe I</i>	185
<i>Annexe J</i>	187

Liste des tableaux

Tableau 1.1 : Tableau récapitulatif des expressions du coefficient de thermophorèse K_{th}	31
Tableau 1.2 : Conductivité thermique de différents matériaux, Hinds (1999)	33
Tableau 1.3 : Propriétés des différents échantillons de carbone utilisés dans l'étude de Suzuki <i>et al.</i> (2009)	50
2.1 Tableau récapitulatif des coefficients a et n pour le calcul du nombre de Nusselt.	84
2.2 : Résultats quantitatifs de l'influence de la taille du maillage sur les températures et pression dans le dispositif.	86
Tableau 3.1 : Evolution du mode pour différents débits d'azote, avec l'écart-type géométrique associé.	103
Tableau 3.2 : Concentration moyenne en nombre et écart-type associé pour des particules de diamètre égal à 50 nm pour des débits de <i>mix</i> N_2 de 0, 100 et 200 ml/min, de propane à 50 ml/min et d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de <i>quench gas</i> d'azote à 7,5 l/min et d'air de dilution à 20 l/min.	105
3.3 : Exemple de résultats obtenus pour 3 mesures expérimentales avec des billes de latex de 200 nm et un gradient de température de 50 750 K/m.	122
3.4 : Tableau récapitulatif de la fraction de particule sortante du DMA pour une mobilité électrique donnée.	123
Tableau 4.1 : Conditions d'essais des résultats expérimentaux présentés en figure 4.5 (d'après Zheng, 2002).	133
Tableau 4.2 : Caractéristiques des agrégats présentés en figure 4.9	141
Tableau 4.3 : Récapitulatif des vitesses de thermophorèse considérées pour une particule primaire de l'agrégat.	142
Tableau 4.4 : Récapitulation des grandeurs utilisées pour déterminer la porosité d'un agrégat	151

Liste des figures

Figure 1.1 : Comparaison théorique du dépôt par thermophorèse et du dépôt par diffusion brownienne, sédimentation et impaction inertielle en régime turbulent (canalisation de 30 cm de diamètre et de 10 m de longueur, vitesse moyenne de 7,8 m/s, nombre de Reynolds de 93 000 calculé pour une température de l'air de 120°C, particules de masse volumique 1000 kg/m ³ et de conductivité thermique de 4,2 W/m.K). Le dépôt par thermophorèse est calculé pour une température de paroi égale à 20°C et une température d'entrée du fluide à 120°C.	18
Figure 1.2 : Effet de la thermophorèse sur la vitesse adimensionnée de dépôt pour un conduit horizontal, Ben Othmane <i>et al.</i> (2010).....	19
Figure 1.3 : Effet de la thermophorèse sur la vitesse adimensionnée de dépôt pour un conduit vertical, Ben Othmane <i>et al.</i> (2010).....	19
Figure 1.4 : Particule soumise à un gradient de température	20
Figure 1.5 : Evolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de la particule.....	21
Figure 1.6 : Représentation des deux types de réflexion des molécules de gaz impactant la surface d'une particule.....	22
Figure 1.7 : Représentation de la couche limite de la particule avec les composantes V_θ et V_r de la vitesse des molécules de gaz dans cette couche limite.	25

Figure 1.8 : Domaine de validité des coefficients de thermophorèse K_{th} comparé aux domaines de validité pour des particules non sphériques comme les agrégats	32
Figure 1.9 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 0,01.....	33
Figure 1.10 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 0,1.	34
Figure 1.11 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 1.....	34
Figure 1.12 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 10.	35
Figure 1.13 : Vecteur vitesse et champ de température pour un nombre de Knudsen égal à 0,1 (Yamamoto et Ishihara, 1988), avec $\hat{k} = \frac{k_p}{k_g}$	37
Figure 1.14 : Morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes (Ouf, 2006)	40
Figure 1.15 : Distribution granulométrique des particules primaires pour un ensemble d'agrégats issus de suie de la combustion de toluène (Ouf, 2006).....	41
Figure 1.16 : Diamètres caractéristiques d'un agrégat (Ouf, 2006).....	41
Figure 1.17 : Schéma représentatif d'un sphéroïde oblate (à gauche) et d'un sphéroïde prolata (à droite).....	42
Figure 1.18 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'une particule de forme oblate ou prolata et une particule sphérique, en fonction du rapport b/a , Leong (1984)	43
Figure 1.19 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'un sphéroïde et celle d'une particule sphérique de même volume en fonction du rapport b/a et pour différents rapports de conductivité thermique k_{21} dans le papier original (rapport entre la conductivité thermique du gaz sur la conductivité thermique de la particule), Williams (1986).....	44
Figure 1.20 : Comparaison de la diffusivité thermophorétique de chaînes et de paquets de particules primaires par rapport à la diffusivité thermophorétique d'une particule primaire isolée, en fonction du nombre de particules primaires, Rosner <i>et al.</i> (1991).....	45
Figure 1.21 : Comparaison de la diffusivité thermique d'une particule sphéro-cylindrique par rapport à la diffusivité thermique d'une particule sphérique de même diamètre, en fonction du nombre de particules primaires exprimé en fonction de la longueur L et du rayon R du cylindre, Rosner <i>et al.</i> (1991).....	46
Figure 1.22 : Comparaison entre la vitesse de thermoporèse d'une particule sphéro-cylindrique et une particule sphérique de même diamètre que le diamètre du cylindre, en fonction de l'orientation de la particule, Garcia Ybarra et Rosner (1989)	47
Figure 1.23 : Exemple d'un agrégat formé par l'algorithme de Mackowski (2006).....	48
Figure 1.24 : Rayon hydrodynamique adimensionnel d'un agrégat en fonction du nombre de particules primaires pour différentes dimensions fractales, Mackowski (2006)	48
Figure 1.25 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'un agrégat et la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire isolée en fonction du nombre de particules primaires, pour différentes dimensions fractales, Mackowski (2006).....	49

Figure 1.26 : Banc expérimental de détermination de la vitesse de thermophorèse de particules de suies (Suzuki <i>et al.</i> , 2009)	50
Figure 1.27 : Evolution de la vitesse de thermophorèse en fonction du gradient de température (Suzuki <i>et al.</i> , 2009)	51
Figure 1.28 : Evolution de la vitesse de thermophorèse en fonction du paramètre $\frac{v_g \nabla T}{T_g}$ (Suzuki <i>et al.</i> , 2009)	51
Figure 1.29 : Evolution de la vitesse de thermophorèse mesurée en fonction de la taille des agrégats (Suzuki <i>et al.</i> , 2009)	52
Figure 1.30 : Représentation d'un agrégat composé de deux sphères soumis à un gradient de température (Mackowski, 1990)	53
Figure 1.31 : Evolution de la diffusivité thermophorétique en fonction du rapport des diamètres des particules primaires (Mackowski, 1990)	54
Figure 1.32 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'une particule sphérique et d'une particule en forme d'agrégat	55
Figure 1.33 : Mesure des effets de la thermophorèse sur une particule isolée avec une cellule de Millikan modifiée, Zheng (2002)	56
Figure 1.34 : Balance électrodynamique utilisée par Li et Davis (1995) pour la mesure de l'effet de la thermophorèse sur une particule isolée	57
Figure 1.35 : Balance électrodynamique pour la mesure de la vitesse de thermophorèse, Zheng et Davis (2001)	58
Figure 1.36 : Banc expérimentale de mesure de la vitesse de thermophorèse de particules avec UT le fluide chaud, CL le fluide froid et AR le réservoir d'aérosols ($2 < Kn < 10$), Santachiara <i>et al.</i> (2002)	58
Figure 1.37 : Coefficient de thermophorèse mesurés par Prodi <i>et al.</i> (2007) en comparaison aux modèles de la littérature (Sagot, 2010)	59
Figure 1.38 : Configuration du banc expérimental annulaire de Sagot <i>et al.</i> (2009)	60
Figure 1.39 : Comparaison entre les résultats expérimentaux de Sagot <i>et al.</i> (2009) et les modèles existant dans la littérature (Sagot <i>et al.</i> 2009)	61
Figure 2.1 : Le SMEC à dépôt (Mesbah, 1993).	64
Figure 2.2 : Le SMEC différentiel à couronne de trous ((Le Bronec, 1998).	64
Figure 2.3 : Le SMEC différentiel à trou central (Le Bronec, 1998).	65
Figure 2.4 : Schéma de principe du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire.	66
Figure 2.5 : Vue en coupe du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire.	67
Figure 2.6 : Vue de dessus des résistances électriques de la plaque supérieure du SMTC avec la fente d'injection de l'aérosol	67
Figure 2.7 : Vue en coupe du circuit de refroidissement du disque inférieur du SMTC	68
Figure 2.8 : Vue de la face interne de la plaque inférieure du SMTC avec la mousse permettant l'homogénéisation du débit d'air filtré Qc.	69
Figure 2.9 : Face interne de la plaque inférieure du SMTC	69
Figure 2.10 : Face interne de la plaque supérieure du SMTC, avec la fente d'injection de l'aérosol	70
Figure 2.11 : Vue d'ensemble du SMTC monté sans son isolation externe	70
Figure 2.12 : Fonction de transfert d'un SMEC à dépôt, (Qa représente le débit d'aérosol et Qc le débit d'air filtré dans le SMEC).	71

Figure 2.13 : Fonction de transfert d'un SMEC différentiel à trou central, (Q_a représente le débit d'aérosol et Q_c le débit d'air filtré dans le SMEC).	72
Figure 2.14 : Les fonctions de courant et champ de vitesse de thermophorèse dans le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire.	74
Figure 2.15 : Représentation de la fonction de transfert du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire (SMTC).....	77
Figure 2.16 : Influence du gradient de température sur la fonction de transfert du SMTC, en fonction du débit d'air filtré avec $Q_a = Q_s = 0,3$ l/min	78
Figure 2.17 : Influence de la différence entre le débit volumique d'injection de l'aérosol Q_a et le débit volumique d'extraction de l'aérosol Q_s sur la fonction de transfert du SMTC....	79
Figure 2.18 : Fraction pénétrante dans la fente d'injection (géométrie de canal annulaire).	82
Figure 2.19 : Représentation du SMTC pour l'étude thermo-aéraulique du dispositif.	83
Figure 2.20 Représentation des conditions convectives sur les faces extérieures du SMTC.....	85
Figure 2.21 Représentation du maillage réalisé dans le cadre de l'étude thermo-aéraulique du SMTC (vue en coupe).....	86
Figure 2.22 : Comparaison qualitative des résultats de température obtenus entre un maillage à 1 000 000 de maille et un maillage de 2 000 000 de mailles.	87
Figure 2.23 : Profil de vitesse dans le SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.	88
Figure 2.24 : Représentation des vecteurs vitesse des extractions de l'air filtré et de l'aérosol.....	88
Figure 2.25 : Profil de vitesse dans le SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue de dessus.	89
Figure 2.26 : Evolution du profil de vitesse entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un débit d'air filtré Q_c égal à 10 l/min et un débit d'aérosol égal à 1 l/min à différentes distances de la plaque froide.....	89
Figure 2.27 : Profil de température dans le SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.	90
Figure 2.28 : Profil de température des extractions de l'air filtré et de l'aérosol obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.	90
Figure 2.29 : Profil de température du fluide entre le disque chaud et le disque froid obtenu par le biais de l'étude numérique, vue de dessus.	91
Figure 2.30 : Evolution du profil de température entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un débit d'air filtré Q_c égal à 10 l/min et un débit d'aérosol égal à 1 l/min à différentes abscisses radiales.	92
Figure 2.31 : Profil de température dans la partie solide du SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.....	92
Figure 2.32 : Profil de température de la surface interne du bloc froid.	93
Figure 2.33 : Profil de température de la surface interne du bloc chaud.	93
Figure 2.34 : Profil de température dans la zone d'équilibre thermique du SMTC	94
Figure 2.35 : Etablissement et stabilité du profil de température dans le SMTC en fonction de l'abscisse radiale et à différentes distances z de la plaque froide.	95
Figure 2.36 : Mesure des températures enregistrées par la caméra thermique sur la surface de rubans noirs positionnés sur la face interne de la plaque chaude du SMTC (consigne de chauffe à 40 °C).....	96
Figure 2.37 : Mesure des températures enregistrées par la caméra thermique sur la surface de rubans noir positionnés sur la face interne de la plaque chaude du SMTC (consigne de chauffe à 150 °C)	96

Figure 3.1 : Schéma descriptif du banc expérimental de qualification du SMTC et de détermination de la vitesse effective de thermophorèse de particules sphériques et non-sphériques.	99
Figure 3.2 : Evolution de la distribution en nombre pour une génération de billes de latex de 100 nm par le biais du générateur TSI 30776	100
Figure 3.3 : Evolution de la concentration en nombre de billes de latex produit par l'atomiseur et sélectionnées par un DMA en fonction du temps, les mesures sont réalisées avec un CPC 3022A-TSI.	101
Figure 3.4 : Schéma de la chambre du générateur miniCAST	101
Figure 3.5 : Evolution de la distribution granulométrique en nombre avec le débit de <i>mix</i> N ₂ et des débits de propane à 50 ml/min, d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de <i>quench gas</i> d'azote à 7,5 l/min et d'air de dilution à 20 l/min.	103
Figure 3.6 : Evolution de la distribution granulométrique en nombre avec des débits de propane à 50 ml/min, d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de débit d'azote de dilution du propane (<i>mix</i> N ₂) à 50 ml/min, avant et après un volume tampon de 4 l en sortie du générateur.	104
Figure 3.7 : Evolution de la concentration en nombre de particules sélectionnées avec un diamètre égal à 50 nm en fonction du temps (30 min) pour des débit de <i>mix</i> N ₂ de 0, 100 ml/min et 200 ml/min, de propane à 50 ml/min et d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de <i>quench gas</i> d'azote à 7,5 l/min et d'air de dilution à 20 l/min	105
Figure 3.8 : Schéma de principe du dispositif de prélèvement des agrégats sur grille de microscopie électronique.	106
Figure 3.9 : Exemple de cliché brut et binarisé d'un agrégat issu du générateur CAST.	106
Figure 3.10 : Distribution en nombre des particules primaires pour l'échantillon d'agrégats prélevé en sortie du générateur CAST.	107
Figure 3.11 : Détermination de la loi fractale et de la morphologie de particules de suie issues du générateur CAST	108
Figure 3.12 : Distribution granulométrique des diamètres de giration obtenue grâce à l'analyse des clichés de microscopie électronique.	111
Figure 3.13 : Evolution du paramètre β en fonction du diamètre de giration.	111
Figure 3.14 : Schéma de principe du <i>Centrifugal Particle Mass Analyser</i> (CPMA), Olfert et Collings (2005).	113
Figure 3.15 : Evolution du nombre de particules primaires composant l'agrégat en fonction du diamètre de mobilité électrique de l'agrégat.	114
Figure 3.16 : Evolution du nombre de particules primaires composant les agrégats sélectionnés par le DMA en fonction du diamètre de mobilité électrique, comparaison entre les résultats obtenus par l'analyse des clichés MET, le CPMA et les théories de Sorensen (2011) et Lall et Friedlander (2006).	115
Figure 3.17 : Schéma de principe du montage expérimental du SMTC en version SMEC.	117
Figure 3.18 : Evolution de la concentration des particules en sortie du SMTC en fonction de la tension électrique appliquée et pour un débit d'air filtré Q _c de 3 l/min, un débit d'aérosol Q _a de 0,3 l/min et des particules de latex de 200 nm.	117
Figure 3.19 : Comparaison entre la fonction de transfert électrique théorique et expérimentale du SMTC en fonction du débit d'air filtré Q _c , pour des particules de latex de 200 nm, une tension de 750 V et un débit d'aérosol Q _a de 0,3 l/min.	118
Figure 3.20 : Evolution de la concentration de l'aérosol mesurée en sortie du SMTC, pour une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm.	119
Figure 3.21 : Evolution du débit d'air filtré mesuré par le débitmètre TSI, pour une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm.	120

Figure 3.22 : Evolution de la concentration en sortie du SMTC en fonction du débit d'air filtré aux conditions standards de température et de pression, pour une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm.	120
Figure 3.23 : Détermination des débits Q_c , Q_a et Q_s à partir de la fonction de transfert expérimentale, exemple pour des billes de latex de 200 nm et un gradient de température de 50 750 K/m.	122
Figure 3.24 : Schéma de principe de la mesure de la granulométrie des particules sélectionnées en sortie du SMTC.	123
Figure 3.25 : Mesure granulométrique en sortie du SMTC pour une sélection d'agrégats de diamètre de mobilité de 100 nm et un gradient de température fixé à 50 750 K/m.	124
Figure 3.26 : Mesure granulométrique en sortie du SMTC pour une sélection d'agrégats de diamètre de mobilité de 170 nm et un gradient de température fixé à 50 750 K/m.	125
Figure 3.27 : Comparaison entre la mesure granulométrique de billes de latex de 200 nm en entrée et sortie du SMTC.	126
Figure 4.1 : Evolution de la vitesse de thermophorèse locale dans le SMTC en fonction de la distance par rapport à la plaque froide.	130
Figure 4.2 : Vitesse de thermophorèse en fonction du diamètre des particules pour un gradient de température égal à 12 750 K/m avec l'incertitude associée (eq. 3.31), comparaison aux modèles théoriques.	131
Figure 4.3 : Vitesse de thermophorèse en fonction du diamètre des particules pour un gradient de température égal à 50 750 K/m avec l'incertitude associée (eq. 3.31), comparaison aux modèles théoriques.	132
Figure 4.4 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse avec les résultats obtenus par application du modèle de Beresnev et Chernyak (avec $\alpha_t=1$ et $\alpha_m=1$) pour un gradient de température de 12 750 K/m.....	132
Figure 4.5 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse avec les résultats obtenus par application du modèle de Beresnev et Chernyak (avec $\alpha_t=1$ et $\alpha_m=1$) pour un gradient de température de 50 750 K/m.....	133
Figure 4.6 : Coefficient de thermophorèse issus de la littérature (légende des mesures dans le tableau 4.1), en comparaison aux modèles de la littérature (Sagot, 2010).	134
Figure 4.7 : Comparaison entre les résultats expérimentaux de cette étude avec les résultats obtenus par Sagot <i>et al.</i> (2009) pour un gradient de température de 12 750 K/m. ...	135
Figure 4.8 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse obtenue pour des particules sphériques (billes de latex) avec les résultats obtenus pour des agrégats de suies de combustion pour un gradient de température de 50 750 K/m.	137
Figure 4.9 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse obtenue pour des particules sphériques (billes de latex) avec les résultats obtenus pour des agrégats de suies de combustion pour un gradient de température de 50 750 K/m, en fonction du nombre de Knudsen.	138
Figure 4.10 : Evolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de mobilité électrique, pour trois températures (plaque chaude, plaque froide et température moyenne).	139
Figure 4.11 : Evolution du nombre de Knudsen en fonction des diamètres caractéristiques (diamètre de mobilité électrique, diamètre de giration et longueur maximale projetée).	139
Figure 4.12 : Evolution de la vitesse de thermophorèse des agrégats de suies de combustion en fonction du nombre de particules primaires composants l'agrégat pour un gradient de température égal à 50 750 K/m.	141

Figure 4.13 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse obtenue pour des agrégats de suies de combustion pour un gradient de température de 50 750 K/m et le modèle de Mackowski (2006)	143
Figure 4.14 : Comparaison entre les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement pour les agrégats issus du CAST et ceux obtenus par Messerer <i>et al.</i> (2003) avec le GFG 1000, en fonction du diamètre de mobilité électrique.....	144
Figure 4.15 : Comparaison entre les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement pour les agrégats issus du CAST et ceux obtenus par Messerer <i>et al.</i> (2003) avec le GFG 1000, en fonction du nombre de particules primaires.....	144
Figure 4.16 : Evolution de la force de traînée adimensionnée (force de traînée d'un agrégat sur la force de traînée d'une particule primaire) en fonction du nombre de particules primaires.....	147
Figure 4.17 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse obtenues avec le modèle de Talbot mais pour différentes expressions de la force de traînée, en fonction du nombre de particules primaires.	148
Figure 4.18 : Représentation d'un agrégat avec son cercle circonscrit et sa longueur maximale projetée.....	150
Figure 4.19 : Evolution de la porosité d'un agrégat en fonction du nombre de particule primaire. .	152
Figure 4.20 : Comparaison entre les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement et le modèle de Waldmann (ligne pointillée horizontale) et le modèle de Talbot. Pour ce dernier, différents ratio de conductivité thermique k_g/k_p sont utilisés (0,0064 trait fin, 0,16 trait épais et 1 pointillé), Messerer <i>et al.</i> (2003).	153
Figure 4.21 : Représentation d'un matériau poreux orienté perpendiculairement au flux de chaleur.	154
Figure 4.22 : Représentation d'un matériau poreux orienté parallèlement au flux de chaleur.....	154
Figure 4.23 : Evolution de la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon la longueur maximale projetée, en fonction du nombre de particules primaires.	155
Figure 4.24 : Evolution de la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon le diamètre de giration, en fonction du nombre de particules primaires.....	155
Figure 4.25 : Evolution du ratio de conductivité thermique du gaz sur la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon la longueur maximale projetée, en fonction du nombre de particules primaires, $k_g = 0,0337$ W/K.m.	156
Figure 4.26 : Evolution du ratio de conductivité thermique du gaz sur la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon le diamètre de giration, en fonction du nombre de particules primaires, $k_g = 0,0337$ W/K.m.	156
Figure 4.27 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Talbot pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction de la longueur maximale projetée de l'agrégat.....	157
Figure 4.28 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Talbot pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction du diamètre de giration de l'agrégat.	158
Figure 4.29 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Beresnev pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction de la longueur maximale projetée de l'agrégat.....	159
Figure 4.30 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Beresnev pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction du diamètre de giration de l'agrégat.	159

INTRODUCTION

Lors d'une situation accidentelle dans une installation nucléaire, la maîtrise du risque incendie nécessite notamment de prédire sa propagation et d'évaluer ses conséquences sur le confinement des substances radioactives à l'intérieur de l'installation. Si la plupart des particules ainsi produites sont récupérées par filtration, une quantité non négligeable est susceptible de se déposer sur les surfaces d'un local ou dans le conduit de ventilation. Les conditions d'incendie provoquant de forts gradients thermiques, le phénomène de dépôt thermophorétique est susceptible de jouer un rôle important.

De nombreux codes de calcul modélisant le transfert et le dépôt des aérosols ont été développés au sein de l'IRSN (ASTEC, SYLVIA, ISIS, etc.). Ces codes utilisent, la plupart du temps, des lois de dépôt validées pour des particules idéales sphériques. Cependant, il est désormais bien établi que, dans certaines situations d'incendie, les particules de suie émises ont une morphologie complexe : il s'agit d'agrégats « fractals », et de nombreuses études ont été réalisées afin de caractériser la morphologie de ces particules (Ouf, 2006), ou encore d'établir des liens entre les différents diamètres équivalents (diamètre de mobilité électrique, diamètre aérodynamique, diamètre de giration).

A l'heure actuelle, se pose la question des conditions et des limites d'utilisation de ces grandeurs dimensionnelles (diamètres équivalents) pour modéliser le comportement physique des agrégats, notamment en termes de dépôt sur des surfaces, de filtration, de charge électrique et de coagulation. Cette question est légitimée par le fait qu'il existe peu de résultats expérimentaux permettant de valider l'utilisation de ces diamètres dans les modèles ou lois qui représentent le comportement physique des agrégats ; certaines études révèlent même des différences entre le comportement des agrégats et des sphères équivalentes.

Outre l'application incendie, une meilleure compréhension du phénomène de thermophorèse des agrégats permettrait également une meilleure prédiction de la vitesse de dépôt de particules pour des domaines industriels nécessitant un traitement de l'air ou des salles blanches (aérospatial, microélectronique, agroalimentaire, pharmacie). Par exemple, dans ce type d'installations, il peut exister des gradients de température importants dans la couche limite thermique des conduits de ventilation (Ben Othmane *et al.*, 2010).

Dans ce contexte, ce travail de recherche a pour objectif d'améliorer la compréhension et de permettre une meilleure modélisation du dépôt des particules de combustion, par l'étude expérimentale du comportement des agrégats afin de prendre en compte l'influence de la morphologie des agrégats sur leur dépôt par effet thermophorétique.

La première étape de l'étude a été consacrée à l'acquisition des connaissances sur la physique des agrégats et le phénomène de thermophorèse. Cette étape a permis de faire une synthèse, dans un premier temps, des différentes lois de dépôt par thermophorèse existant pour les particules sphériques, et dans un deuxième temps, des caractéristiques fractales définissant la morphologie des agrégats de suie ainsi que les études présentant une influence de cette morphologie sur leur comportement thermophorétique. Cette synthèse a permis de mettre en évidence la nécessité d'un dispositif à haute résolution pour mesurer et comparer les vitesses de thermophorèse de particules sphériques et non-sphériques.

La deuxième étape a porté sur la mise en place et la qualification du dispositif expérimental puis une comparaison des résultats obtenus pour des particules sphériques avec les théories existantes et les travaux disponibles dans la littérature afin de valider le dispositif.

La troisième étape consistait à réaliser des essais avec des agrégats de combustion de morphologie fractale et de les comparer aux résultats obtenus avec les particules sphériques. En parallèle, une analyse morphologique des agrégats étudiés par microscopie électronique a permis de faire le lien entre certains paramètres morphologiques des agrégats et la vitesse de thermophorèse.

Les différents points cités ci-dessus sont détaillés dans ce manuscrit, qui est organisé autour de quatre chapitres.

Dans un premier chapitre nous effectuons une description bibliographique du phénomène de thermophorèse pour les particules sphériques et de la nature et de la morphologie quasi-fractale des particules de suies. Une présentation des travaux, pour la plupart théoriques, sur le comportement thermophorétique de particules non-sphériques (formes simples) et d'agrégats, est

aussi effectuée. Enfin, nous présenterons les différentes méthodes expérimentales pour mesurer la force, la vitesse ou le coefficient de thermophorèse.

La deuxième partie présente un dispositif original permettant d'obtenir directement, et avec une forte résolution, la vitesse de thermophorèse de particules sphériques ou non sphériques ; le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire ou SMTC. Ce dispositif, qui a fait l'objet d'un travail de conception important, est d'abord décrit dans son ensemble. Nous présenterons ensuite le développement théorique de la fonction de transfert du SMTC permettant de relier la vitesse de thermophorèse des particules sélectionnées aux conditions expérimentales. Enfin nous exposerons l'étude thermique numérique réalisée afin de dimensionner l'instrument et de s'assurer de l'homogénéité thermique et du profil de vitesse dans la zone de sélection des particules.

La troisième partie est consacrée à la description du banc expérimental utilisé d'une part pour la qualification du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire et, d'autre part, pour l'étude du comportement thermophorétique des particules de suie. Les différentes composantes du banc seront passées en revue et nous nous attacherons à décrire les résultats de caractérisation des générateurs de particules et des suies produites, en termes de morphologie fractale. Nous présenterons la qualification du SMTC en mode électrique, permettant de valider les côtes géométriques du dispositif, ainsi que le protocole expérimental pour l'établissement de la fonction de transfert thermique. Enfin, une description de la méthode d'obtention de la vitesse de thermophorèse expérimentale à partir de la fonction de transfert thermique sera effectuée et nous discuterons des incertitudes et des artéfacts associés à celle-ci.

Le quatrième chapitre regroupe les résultats expérimentaux sur la mesure de la vitesse de thermophorèse de particules sphériques (billes de latex) et d'agrégats. Dans un premier temps, nous exposerons les résultats obtenus avec des billes de latex ayant permis la validation du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire. Pour cela, les résultats seront comparés avec les théories et les expériences de la littérature. Une seconde partie de ce chapitre est consacrée à la présentation des résultats expérimentaux obtenus avec des agrégats de suie de combustion. Ces résultats sont comparés avec les essais sur les billes de latex dans le but de montrer l'influence de la morphologie fractale de ces agrégats sur la vitesse de thermophorèse.

Les résultats obtenus avec les agrégats feront l'objet d'une discussion afin de corrélérer les caractéristiques morphologiques des agrégats à leur comportement thermophorétique.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous avancerons un certain nombre d'hypothèses permettant d'expliquer les résultats observés expérimentalement. Pour cela une étude sur la force de traînée d'une part, et sur l'hypothèse d'une conductivité thermique effective de l'agrégat d'autre part sera présentée.

Pour clore ce manuscrit, une conclusion générale regroupe les principaux éléments mis en évidence dans le cadre de ce travail de recherche ainsi que leurs apports. Les perspectives qui peuvent être envisagées seront également évoquées.

1. ETAT DE L'ART DES CONNAISSANCES SUR LA THERMOPHORESE POUR DES PARTICULES SPHERIQUES ET NON SPHERIQUES

1.1. Importance de la thermophorèse par rapport aux autres mécanismes de dépôt

Il existe différents mécanismes provoquant le dépôt des particules sur les parois d'un local ou d'une canalisation :

Par exemple, des particules en suspension peuvent ne pas suivre l'écoulement gazeux qui les porte, lorsque leur inertie est trop importante. Cette dérive peut provoquer le dépôt des particules sur les parois, ce mécanisme est habituellement qualifié de dépôt inertiel. Ce type de dépôt est généralement le mécanisme qui contrôle la capture des grosses particules. L'interaction de l'inertie avec la turbulence du fluide joue un rôle primordial dans le dépôt des aérosols transportés par un écoulement turbulent. Le dépôt par diffusion turbulente correspond précisément à une impaction inertielle des particules projetées vers la paroi par les tourbillons.

Les très fines particules en suspension dans un gaz sont sujettes à un mouvement aléatoire (mouvement brownien) résultant de leur collision avec les molécules du gaz. La diffusion brownienne, issue de ce phénomène, produit un flux de dépôt aux parois, en écoulement laminaire comme en écoulement turbulent.

Dans des situations d'écoulement non isothermes, le dépôt par migration thermophorétique peut apparaître. Nous négligerons, afin de simplifier notre étude, les forces électrostatiques dont l'influence sur le dépôt peut être importante, notamment pour des particules portant plusieurs charges électriques comme on peut en trouver en situation d'incendie.

Afin d'identifier clairement quel phénomène de dépôt est prépondérant dans le contexte de cette étude (situation d'incendie), nous présentons sur la figure 1.1 une comparaison théorique du dépôt par thermophorèse et du dépôt par diffusion brownienne, sédimentation et impaction inertielle en régime turbulent dans une canalisation de 30 cm de diamètre et de 10 m de longueur, et pour une vitesse moyenne du fluide de 7,8 m/s, ce qui correspond à un nombre de Reynolds égal à 93 000. Les caractéristiques de l'air sont calculées pour une température égale à 120°C et les particules ont une masse volumique de 1000 kg/m³ et une conductivité thermique de 4,2 W/m.K. Le dépôt par thermophorèse est calculé pour une température de paroi égale à 20°C et une température d'entrée du fluide à 120°C.

La courbe théorique représentant l'évolution de la fraction déposée par diffusion brownienne, sédimentation et impaction inertielle en fonction du diamètre des particules est calculée respectivement à partir des relations de Wells et Chamberlain (1967), de Fuchs (1954) et de Liu et Agarwal (1974).

La courbe théorique représentant l'évolution de la fraction déposée par thermophorèse en fonction du diamètre des particules est calculée avec la relation de Romay *et al.* (1998) :

$$Fr = 100 \left\{ 1 - \left[\frac{T_{\text{paroi}} + (T_e - T_{\text{paroi}}) \exp(-\pi D_h h L / \rho_g Q C_p)}{T_e} \right]^{\text{Pr} K_{\text{th}}} \right\}, \quad (1.1)$$

où h représente le facteur de convection thermique, k_g , ρ_g , C_p et Q la conductivité thermique, la masse volumique, la chaleur spécifique et le débit du gaz, T_{paroi} et T_e les températures de la paroi interne de la canalisation et d'entrée du gaz. Pr et K_{th} correspondent au nombre de Prandtl et au coefficient de thermophorèse que l'on décrira plus tard.

On remarque que, pour une différence de 100°C entre le fluide et la température de la paroi interne de la canalisation, le dépôt des particules de taille inférieure à 6 µm est principalement dû au mécanisme de thermophorèse.

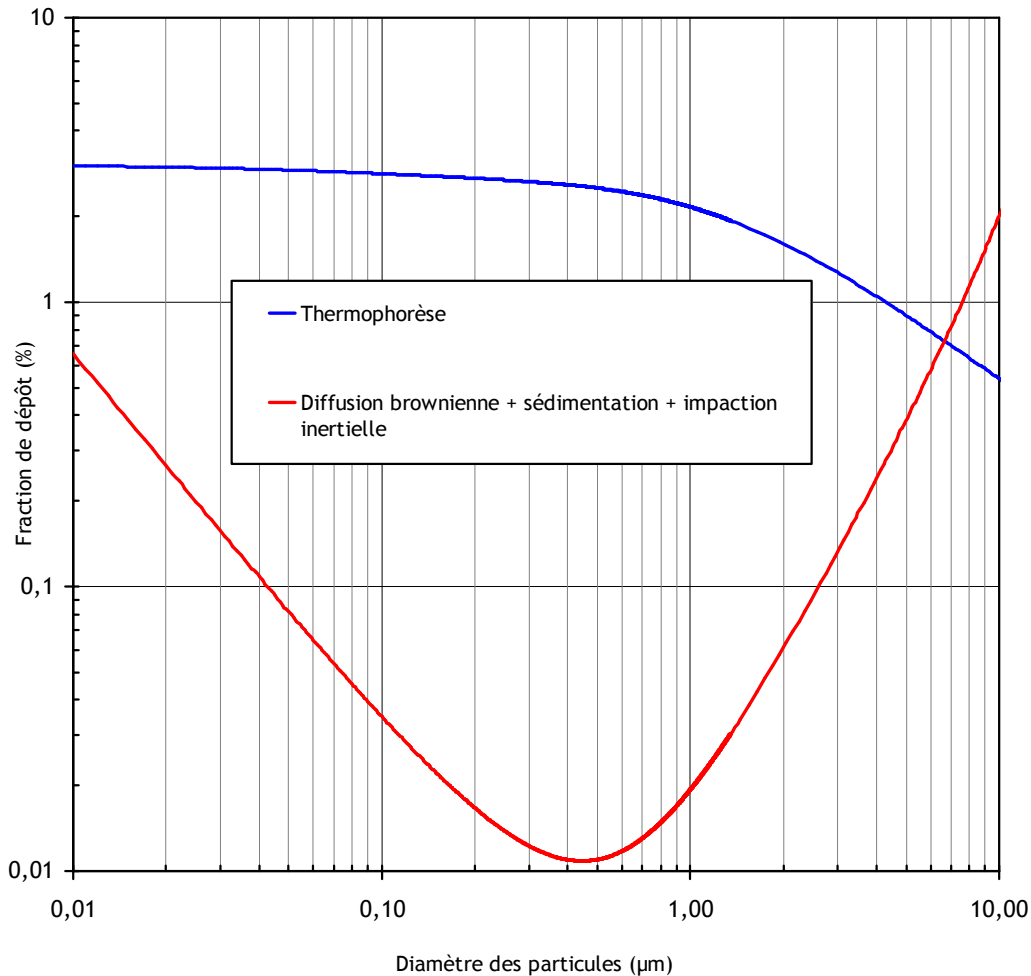


Figure 1.1 : Comparaison théorique du dépôt par thermophorèse et du dépôt par diffusion brownienne, sédimentation et impaction inertielle en régime turbulent (canalisation de 30 cm de diamètre et de 10 m de longueur, vitesse moyenne de 7,8 m/s, nombre de Reynolds de 93 000 calculé pour une température de l'air de 120°C, particules de masse volumique 1000 kg/m³ et de conductivité thermique de 4,2 W/m.K). Le dépôt par thermophorèse est calculé pour une température de paroi égale à 20°C et une température d'entrée du fluide à 120°C.

Plus récemment un modèle eulérien, basé sur les travaux de Nérissou (2009), a été développé par Ben Othmane *et al.* (2010) pour l'étude du dépôt d'aérosols par thermophorèse, diffusion et sédimentation dans des conduits types d'usine agroalimentaire. Dans ce type d'usine, les gradients de température sont importants car, dans un objectif de conservation alimentaire, les zones de travail sont conditionnées thermiquement. Ainsi, le dépôt par thermophorèse est estimé pour des particules de tailles comprises entre 0,3 μm et 20 μm dans des canalisations verticales et horizontales de diamètre 35 cm. Le nombre de Reynolds est estimé à 130 000, ce qui donne des vitesses de l'ordre de 5,4 m/s.

Le modèle développé par Ben Othmane *et al.* (2010) prend en compte les mécanismes d'impaction inertielle turbulente, de diffusion brownienne, de sédimentation et de thermophorèse. La figure 1.2 montre les résultats des calculs où l'ensemble de ces mécanismes de transport sont pris en compte. La différence de température ΔT étudiée correspond à la différence de température entre la paroi du conduit et la température de la couche supérieure de la couche limite. Pour un conduit horizontal, la thermophorèse tend à accroître le dépôt pour des particules de diamètre inférieur à 3 μm. Au-delà de cette taille de particules, l'effet de la thermophorèse est négligeable devant les autres mécanismes de dépôt.

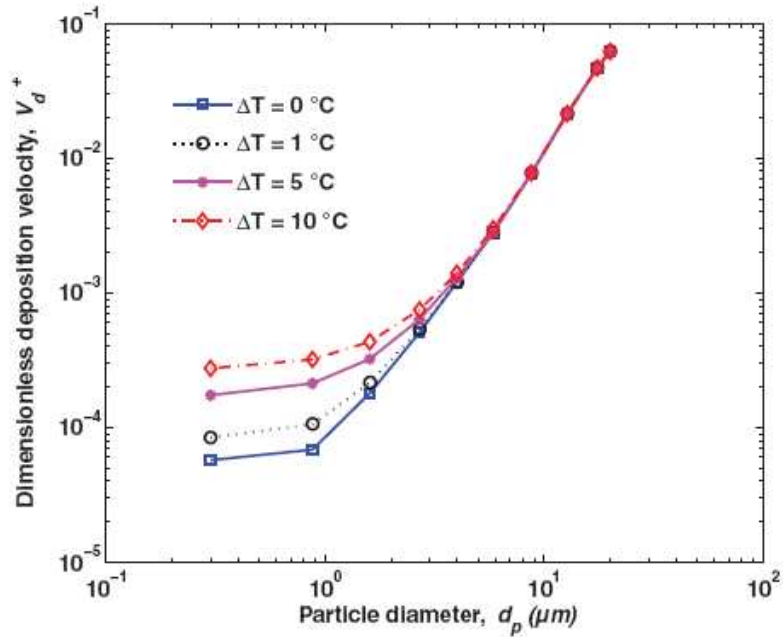


Figure 1.2 : Effet de la thermophorèse sur la vitesse adimensionnée de dépôt pour un conduit horizontal, Ben Othmane *et al.* (2010)

La figure 1.3 montre les résultats des calculs pour un conduit vertical. On peut constater que la thermophorèse tend à accroître le dépôt des particules sur l'ensemble du domaine étudié. Cependant l'effet de la thermophorèse sur le dépôt est particulièrement visible pour les particules dont la taille est comprise entre 0,3 μm et 10 μm .

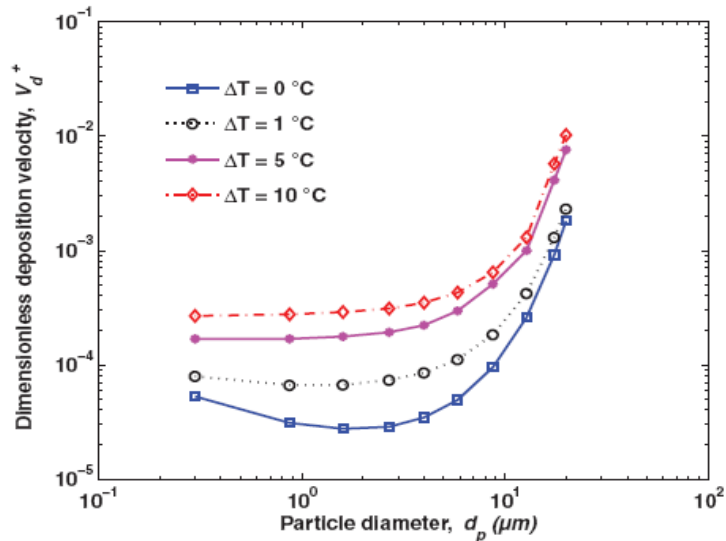


Figure 1.3 : Effet de la thermophorèse sur la vitesse adimensionnée de dépôt pour un conduit vertical, Ben Othmane *et al.* (2010)

Nous avons vu dans cette partie, par le biais d'une étude théorique (figure 1.1) et par le modèle développé par Ben Othmane *et al.* (2010), qu'en situation d'écoulement non isotherme, le dépôt par thermophorèse était prépondérant par rapport aux autres mécanismes de dépôts (diffusion brownienne, sédimentation, impaction inertielle) pour des particules de tailles inférieures à 7 μm . Nous allons dans la suite de ce chapitre nous intéresser à la description du phénomène de

thermophorèse pour des particules sphériques et du comportement thermophorétique des particules de suies.

1.2. Principe de la thermophorèse

Lorsque de fines particules sont en suspension dans un gaz où règne un gradient de température, il est possible d'observer leur migration de la région la plus chaude vers la région la plus froide.

Ce phénomène a pour origine les collisions entre les molécules du gaz porteur et la particule. Dans un écoulement, la face de la particule en regard de la face chaude subit des collisions avec une fréquence plus élevée et par des molécules plus rapides que la surface en regard de la surface froide. Ce déséquilibre en termes de quantité de mouvement et de flux moléculaire induit une force de thermophorèse qui est responsable de la migration de la particule. La figure 1.4 représente schématiquement le principe de thermophorèse avec la différence de vitesse entre les molécules de la zone chaude et les molécules de la zone froide.

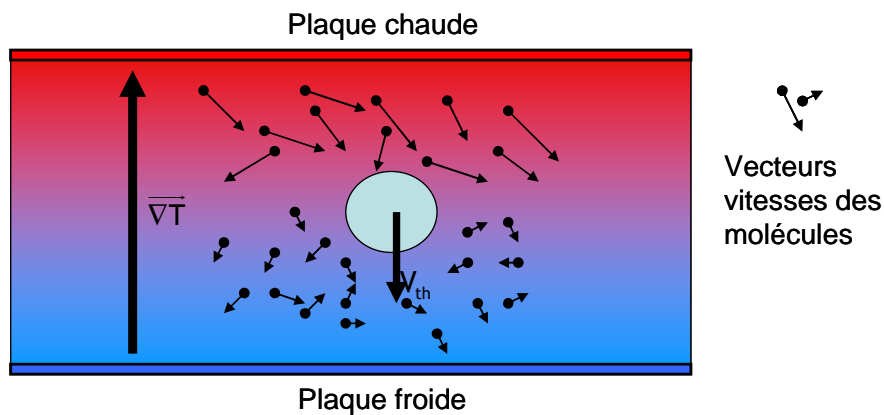


Figure 1.4 : Particule soumise à un gradient de température

D'une manière générale la force de thermophorèse F_{th} appliquée à une particule est donnée par l'intégration sur sa surface S de la quantité de mouvement totale qui lui est transférée par les molécules de gaz de masse m et s'exprime d'après la relation 1 (Montassier, 1990) :

$$\vec{F}_{th} = -\int dS \left[\int m\vec{v}(\vec{v}\cdot\vec{n})f^- dv + \int m\vec{v}(\vec{v}\cdot\vec{n})f^+ dv \right], \quad (1.2)$$

où \vec{v} , dv et \vec{n} sont respectivement le vecteur vitesse des molécules, l'élément de volume de l'espace des vitesses \vec{v} et le vecteur unitaire normal à la surface de la particule (dirigé vers l'extérieur) ; f^+ et f^- sont les fonctions de distribution des vitesses des molécules du gaz à la surface de la particule et cela pour les molécules quittant la surface et les molécules s'impactant sur la surface.

L'expression 1.2 est valable pour l'ensemble des tailles de particules ; cependant, la principale difficulté réside dans l'expression des fonctions de distributions de vitesse des molécules.

1.3. Continuité du milieu

La continuité du milieu doit être définie, car dans ce chapitre on remarquera son influence sur la vitesse de thermophorèse. Pour caractériser le milieu, on utilise le nombre adimensionnel de Knudsen qui s'exprime en fonction du libre parcours moyen des molécules du gaz porteur λ et du diamètre de la particule par la relation :

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

où λ est le libre parcours moyen du gaz et représente la distance moyenne que parcourt une molécule entre deux chocs. Dans ce chapitre, on prendra comme valeur de λ , celle de l'air aux conditions standards de température (273,15°K) et de pression (1013 hPa) et qui est de 66,4 nm.

De cette relation on peut distinguer trois régimes :

- $Kn \ll 1$: domaine continu,
- $Kn \approx 1$: domaine intermédiaire,
- $Kn \gg 1$: domaine moléculaire.

Dans le domaine moléculaire, les trajectoires des particules sont affectées par le mouvement des molécules du gaz. Par conséquent, la théorie cinétique des gaz est utilisée pour comprendre le comportement de ces particules. Dans le domaine continu, les particules de plus grand diamètre peuvent être traitées comme étant submergées dans un fluide et donc moins sensibles aux chocs individuels des molécules de gaz. Dans ce domaine, la dynamique des fluides est utilisée pour comprendre le comportement des particules. Dans le domaine intermédiaire, une correction des équations du régime continu permet d'analyser ce comportement. La figure 1.5 représente l'évolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de la particule et les trois domaines présentés précédemment.

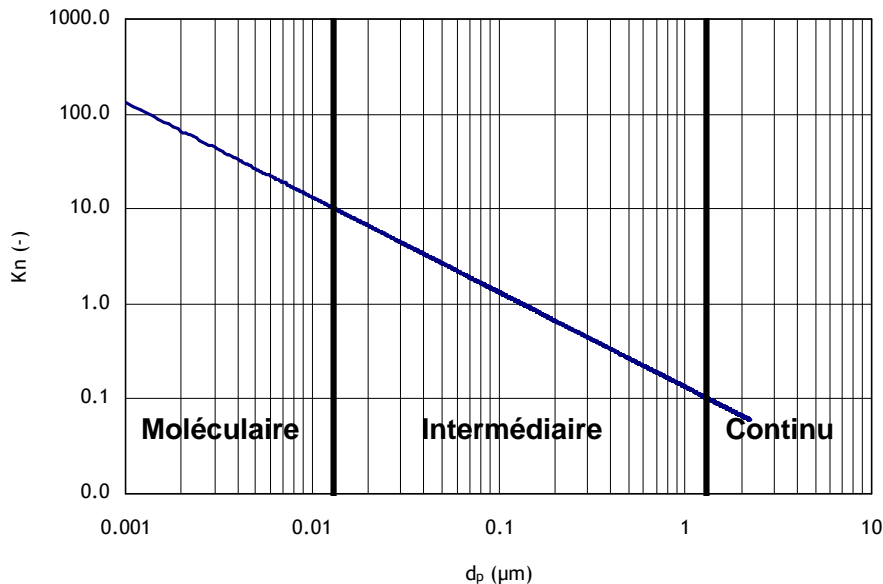


Figure 1.5 : Evolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de la particule

1.4. Expression de la vitesse de thermophorèse pour une particule sphérique dans le domaine moléculaire $Kn \gg 1$

Lorsque $Kn \gg 1$, on suppose que la distribution des vitesses des molécules impactant la particule n'est pas affectée par la présence de la particule. La distribution des vitesses f^- de l'équation 1.2 est alors obtenue par une résolution de l'équation de Boltzmann.

Par contre la distribution des vitesses f^+ des molécules quittant la surface de la particule suit un modèle de réflexion dépendant à la fois d'une réflexion spéculaire et d'une réflexion diffuse. Pour calculer la vitesse de thermophorèse d'une particule, il est donc nécessaire de déterminer la manière dont les molécules du gaz porteur sont réfléchies par la surface de la particule après la collision.

Pour la réflexion spéculaire, la collision entre la surface de la particule et les molécules de gaz est complètement élastique. Pour la réflexion diffuse, les molécules de gaz entrant en contact avec la particule sont en équilibre avec sa surface et quittent celle-ci avec une distribution de vitesse maxwellienne déterminée par la température de surface de la particule. Les deux types de réflexions sont représentés schématiquement sur la figure 1.6.

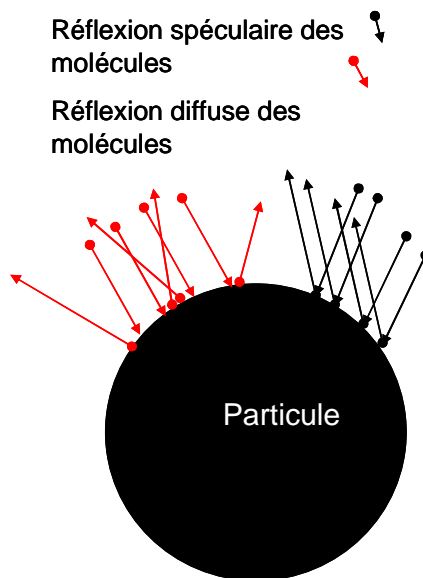


Figure 1.6 : Représentation des deux types de réflexion des molécules de gaz impactant la surface d'une particule

La différence entre ces deux types de réflexions n'est pas négligeable et caractérise l'interaction entre les molécules du gaz porteur et la particule. Pour mieux décrire ce phénomène, il est nécessaire de prendre en considération le fait qu'aucune des deux réflexions ne décrit au mieux l'interaction gaz/particule : c'est pour cette raison qu'il est admis que les molécules se réfléchissent selon un modèle situé entre ces deux modes de réflexions, qui peut être représenté par la relation :

$$f^+(v) = \alpha_m f^{0+}(v) + (1 - \alpha_m) f^+(v'), \quad (1.4)$$

où la fraction α_m (coefficient d'accommodation de quantité de mouvement) représente la fraction des particules incidentes qui subit une réflexion diffuse et $(1 - \alpha_m)$ une réflexion spéculaire, f^{0+} est la fonction maxwellienne de distribution des vitesses des molécules diffusées dans toutes les directions à partir de l'élément dS de la particule, et v' est la vitesse de réflexion spéculaire.

1.4.1. Le facteur d'accommodation de quantité de mouvement

Le coefficient d'accommodation de quantité de mouvement s'exprime selon la relation :

$$\alpha_m = \frac{M_i - M_e}{M_i}, \quad (1.5)$$

où M_i et M_e sont respectivement les composantes tangentielles de la quantité de mouvement moyenne entrante et sortante à la surface de la particule.

1.4.2. Le facteur d'accommodation thermique

Tout comme le facteur d'accommodation de quantité de mouvement, le facteur d'accommodation thermique s'exprime selon la relation :

$$\alpha_t = \frac{E_i - E_e}{E_i - E_s}, \quad (1.6)$$

où $E_i - E_e$ représente le flux d'énergie moyen dû aux collisions moléculaires à travers la surface du solide et $E_i - E_s$ représente le flux d'énergie moyen dû aux collisions moléculaires à travers la surface du solide si l'interaction est complète, à savoir si la température de la molécule réfléchie est égale à celle de la particule.

La valeur du coefficient d'accommodation thermique varie entre 1 et 0. Une valeur du facteur d'accommodation égale à 1 signifie une accommodation complète et une réflexion seulement diffuse, la molécule est alors en équilibre thermique avec la surface de la particule lorsqu'elle est réfléchie. Au contraire, un coefficient d'accommodation thermique égal à 0 signifie une réflexion spéculaire et une absence d'échange thermique entre la molécule de gaz et la surface de la particule (transfert adiabatique).

1.4.3. Expression de Waldmann

Waldmann et Schmitt (1966) sont les premiers à fournir une expression de la force de thermophorèse d'une particule sphérique dans le domaine moléculaire pour un gaz monoatomique :

$$\overline{F}_{th} = -\frac{32}{15} \frac{r_p^2}{V_m} k_g \overline{\nabla T}, \quad (1.7)$$

où r_p représente le rayon de la particule, k_g la conductivité thermique du gaz, ∇T le gradient de température, et V_m la vitesse moyenne d'agitation thermique du gaz.

Pour les gaz polyatomiques, Waldmann précise que l'on peut remplacer la conductivité thermique k_g du gaz par la conductivité thermique translationnelle k_T . Pour les gaz polyatomiques de masse moléculaire m et de viscosité dynamique du gaz η_g , cette fraction translationnelle k_T de la conductivité thermique totale k_g s'exprime par la relation :

$$K_T = \frac{15k_B \eta_g}{4m}, \quad (1.8)$$

où k_B représente la constante de Boltzmann.

Si on suppose que la particule sphérique n'est soumise qu'à la force de traînée s'opposant à son mouvement et à la force de thermophorèse, nous pouvons établir le bilan de forces :

$$\overline{F}_{th} + \overline{F}_T = 0. \quad (1.9)$$

Toujours d'après Waldmann et Schmitt, la force s'opposant au mouvement de la particule se décrit par :

$$F_T = \frac{32}{3} \left[1 + \frac{\pi \alpha_m}{8} \right] r_p^2 \frac{P}{V_q} V_{th}, \quad (1.10)$$

où V_{th} représente la vitesse de la particule sphérique par rapport au fluide, V_q la vitesse quadratique moyenne et P la pression du gaz.

Nous pouvons ainsi déterminer, d'après les relations 1.7 et 1.9, la vitesse de thermophorèse d'une particule sphérique en régime moléculaire :

$$\overline{V}_{th} = -\frac{3}{4} \frac{1}{1 + \frac{\pi \alpha_m}{8}} \frac{\eta_g}{\rho_g T} \overline{\nabla T}, \quad (1.11)$$

où α_m représente le facteur d'accommodation de quantité de mouvement, ρ_g la masse volumique du gaz, η_g la viscosité dynamique du gaz, T la température moyenne du gaz autour de la particule et ∇T le gradient de température.

La vitesse de thermophorèse peut s'exprimer sous la forme :

$$\overline{V}_{th} = K_{wa} \frac{\eta_g}{\rho_g T} \overline{\nabla T}, \quad \text{avec } K_{wa} = -\frac{3}{4} \frac{1}{1 + \frac{\pi}{8} \alpha_m}. \quad (1.12)$$

D'après l'expression proposée par Waldmann et Schmitt (1966), la vitesse de thermophorèse d'une particule sphérique dans le domaine moléculaire ne dépend pas de son diamètre.

1.5. Expression de la vitesse de thermophorèse pour une particule sphérique dans le domaine continu $Kn \ll 1$ et de transition

Il existe de nombreuses expressions pour déterminer la vitesse de thermophorèse d'une particule sphérique dans le domaine continu et de transition. Dans ce chapitre, seront présentés les différentes expressions de cette vitesse de thermophorèse que l'on peut trouver dans la littérature.

1.5.1. Expression d'Epstein

Lorsque $Kn \ll 1$, on ne peut plus ignorer la présence de la particule, et la distribution des vitesses des molécules de gaz f est modifiée à son voisinage. Epstein (1929) a montré que, dans ce domaine, la vitesse de thermophorèse peut être déterminée par application des équations de Navier-Stokes combinées aux conditions aux limites appropriées.

Les conditions limites utilisées par Epstein sont, en utilisant un système de coordonnées polaires (r, θ) , représentées sur la figure 1.7 et détaillées ci-dessous :

- Egalité des flux de chaleur à la surface de la particule, soit pour $r = r_p$:

$$k_g \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right) = k_p \left(\frac{\partial T_p}{\partial r} \right), \quad (1.13)$$

où T et T_p représentent la température du gaz et la température de la particule à un point donné.

- Conditions de vitesse à la surface de la particule avec, pour $r = r_p$, la composante tangentielle V_θ qui s'exprime sous la forme :

$$V_{\theta} = C_s \frac{\eta_g}{\rho_g T} \text{Kn} \left(\frac{\partial T}{\partial \theta} \right)_{r=r_p}, \quad (1.14)$$

où C_s représente le coefficient de « glissement thermique » qui sera présenté plus tard dans le document.

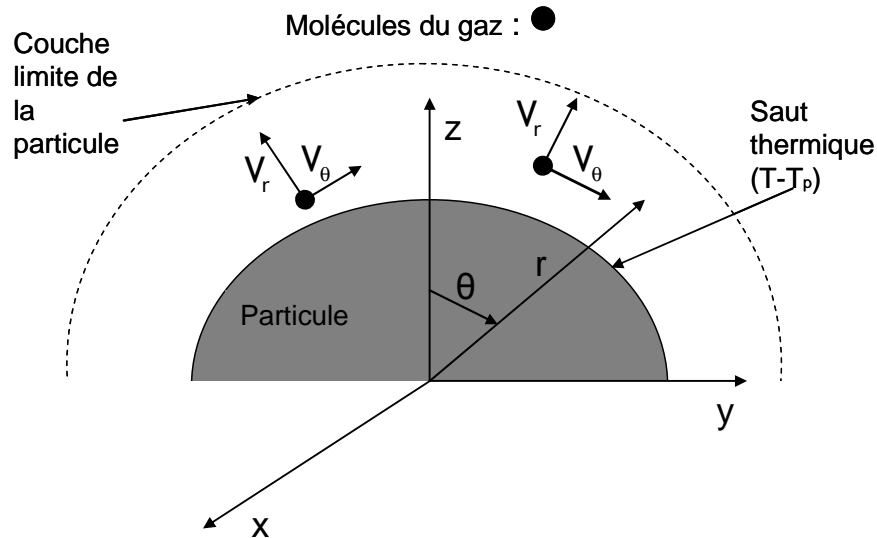


Figure 1.7 : Représentation de la couche limite de la particule avec les composantes V_{θ} et V_r de la vitesse des molécules de gaz dans cette couche limite.

Avec ces conditions aux limites, Epstein (1929) arrive à l'expression suivante de la force de thermophorèse :

$$F_{th} = -9\pi r_p \frac{\eta_g}{\rho_g T} \left(\frac{k_g}{2k_g + k_p} \right) \nabla T, \quad (1.15)$$

où k_g et k_p représentent respectivement la conductivité thermique du gaz et celle de la particule.

De la relation 1.9 et de l'expression de la résistance du milieu au mouvement pour des particules supérieures à $1 \mu\text{m}$, telle que décrite par la loi de Stokes suivante :

$$\overline{F}_T = 6\pi r_p \eta_g \overline{V}_{th}, \quad (1.16)$$

on en déduit l'expression de la vitesse de thermophorèse V_{th} de Epstein :

$$\overline{V}_{th} = -K_{ep} \frac{\eta_g}{\rho_g T} \overline{\nabla T} \text{ avec } K_{ep} = 2C_s \frac{k_g}{2k_g + k_p}, \quad (1.17)$$

où C_s est un facteur dépendant du facteur d'accommodation thermique et dont une première valeur donnée par Maxwell (1879) est égale à $\frac{3}{4}$.

Cette relation montre une indépendance de la vitesse de thermophorèse par rapport à la taille des particules. La relation et les conditions aux limites d'Epstein conviennent parfaitement pour des particules de faible conductivité thermique comme des gouttes d'huile. Cependant, lorsqu'on applique cette théorie à des particules de conductivité thermique élevée, comme du NaCl ou des gouttes de mercure, la relation n'est plus valable (Brock, 1962).

1.5.2. Expression de Brock

Pour résoudre ce problème, Brock (1962) reprend et modifie les conditions aux limites proposées par Epstein en introduisant les hypothèses suivantes :

- la température de la particule est constante,
- il y a égalité des flux de chaleur à la surface de la particule ;

$$k_g \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r=r_p} = k_p \left(\frac{\partial T_p}{\partial r} \right)_{r=r_p}, \quad (1.18)$$

- les conditions de vitesses dans la couche limite de la particule sont :

$$V_\theta = C_m \lambda_g \left[r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{V_\theta}{r} \right) + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial V_r}{\partial \theta} \right) \right]_{r=r_p} + C_s \frac{\eta_g}{\rho_g T} \text{Kn} \left(\frac{\partial T}{\partial \theta} \right)_{r=r_p}, \quad (1.19)$$

où V_θ et V_r représentent les composantes de la vitesse, en coordonnées polaires, du gaz à la surface de la particule,

- il existe un saut de température à la surface de la particule défini par :

$$T - T_p = C_t \lambda_g \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r=r_p}, \quad (1.20)$$

où C_t , C_m et C_s sont des coefficients dépendant des facteurs d'accommodation thermique et de quantité de mouvement qui seront présentés à la fin de ce chapitre, et λ_g le libre parcours moyen.

Avec ces nouvelles conditions aux limites, Brock (1962) arrive à l'expression de la force de thermophorèse suivante :

$$\overline{F}_{th} = 12C_s \frac{\pi \eta_g^2}{\rho_g T} r_p \left[\frac{1}{1 + 3C_m \text{Kn}} \cdot \frac{k_g / k_p + C_t \text{Kn}}{(1 + 2k_g / k_p + 2C_t \text{Kn})} \right] \overline{\nabla T}. \quad (1.21)$$

Pour exprimer la vitesse de thermophorèse, Brock n'utilise plus la loi de Stokes (eq. 1.16), mais fait son calcul grâce à l'expression de la force de traînée de Basset qu'on peut trouver dans l'ouvrage de Hidy et Brock (1970) et qui apporte une légère correction aux formules de Stokes. Cette force de traînée n'est valable que pour un nombre de Knudsen inférieur à 0,1.

$$F_T = 6\pi \eta_g r_p \left(\frac{1 + 2C_m \text{Kn}}{1 + 3C_m \text{Kn}} \right) V_s. \quad (1.22)$$

Grace aux relations 1.9, 1.21 et 1.22 Brock (1962) arrive à une expression de la vitesse de thermophorèse V_{th} donnée par :

$$V_{th} = -K_B \frac{\eta_g}{\rho_g T} \overline{\nabla T} \quad \text{avec} \quad K_B = 2C_s \frac{k_g / k_p + C_t \text{Kn}}{(1 + 2k_g / k_p + 2C_t \text{Kn})(1 + 2C_m \text{Kn})}. \quad (1.23)$$

Cependant, les valeurs obtenues avec cette relation pour des particules de faible conductivité thermique ne correspondent pas aux valeurs obtenues expérimentalement.

Pour le domaine intermédiaire, Brock (1967) propose une expression de la vitesse de thermophorèse basée sur les travaux de Waldmann en considérant la particule comme une molécule de grande dimension. Les hypothèses considérées par Brock sont :

- un gradient de température uniforme à une grande distance de la particule,
- une conductivité thermique de la particule inférieure à celle du gaz.

Waldmann résout l'équation 1.2 pour arriver à une fonction inverse du nombre de Knudsen :

$$F_{th} = F_{th}^* \left(1 - \left(0,06 + 0,09\alpha_m + 0,28\alpha_m \left(1 - \alpha_t \frac{k_g}{2k_p} \right) \right) \frac{1}{Kn} \right), \quad (1.24)$$

où F_{th}^* représente la force de thermophorèse précédemment définie par Waldmann (Cf. relation 1.10).

Jacobsen et Brock (1965) montrent expérimentalement que, pour des nombres de Knudsen supérieurs à 0,2, la force de thermophorèse décroît exponentiellement comme une fonction inverse du nombre de Knudsen et l'équation 1.24 peut se mettre sous la forme :

$$\bar{V}_{th} = -K_{in} \frac{\eta_g}{\rho_g T} \bar{\nabla} T \quad \text{avec} \quad K_{in} = \frac{3}{4} \frac{1}{1 + \frac{\pi}{8} \alpha_m} \exp \left(\frac{0,09 + 0,12\alpha_m + 0,28\alpha_m \left(\alpha_t \frac{k_g}{k_p} - 1 \right)}{Kn} \right). \quad (1.25)$$

1.5.3. Expression de Derjaguin

Derjaguin et Yalamov (1965) et Derjaguin *et al.* (1976) ont développé une nouvelle expression de la vitesse de thermophorèse. Ils utilisent pour cela la notion de thermodynamique irréversible pour exprimer la vitesse de thermophorèse pour les grosses particules de diamètres supérieurs à 1 μm . Ils obtiennent alors la relation 1.26 :

$$\bar{V}_{th} = -K_{der} \frac{\eta_g}{\rho_g T} \bar{\nabla} T \quad \text{avec} \quad K_{der} = 2C_s \frac{k_g/k_p + C_t Kn}{1 + 2k_g/k_p + 2C_t Kn}, \quad (1.26)$$

où C_s et C_t prennent respectivement les valeurs de 1,1 et 2,16.

1.5.4. Expression de Talbot

En étudiant les limites des relations de Brock (eq. 1.21) et de Waldmann (eq. 1.9) pour un nombre de Knudsen tendant vers l'infini, Talbot (1980) arrive au constat que la relation de Brock tend vers la relation de Waldmann à un facteur C_s/C_m près. Or, ce rapport est très proche de 1, on peut donc en déduire que les limites de ces relations sont identiques.

Talbot fait donc une interpolation entre le domaine moléculaire et le domaine continu et arrive à une expression de la force de thermophorèse valable sur l'ensemble du domaine du nombre de Knudsen (moléculaire, transitoire et continu) :

$$F_{th} = -12\pi \frac{\eta_g^2 C_s r_p}{\rho_g T} \left[\frac{k_g/k_p + C_t Kn}{(1 + 3C_m Kn)(1 + 2k_g/k_p + 2C_t Kn)} \right] \bar{\nabla} T, \quad (1.27)$$

où C_s , C_t et C_m sont respectivement égaux à 1,147 ; 2,2 et 1,146.

Pour l'interpolation de l'expression de la vitesse de thermophorèse sur l'ensemble du domaine, J.R. Brock utilise la force de traînée de Millikan-Cunningham :

$$F_T = \frac{6\pi\eta_g r_p}{Cu} V_{Th}, \quad (1.28)$$

où Cu est le facteur de correction de Cunningham équivalent à :

$$Cu = 1 + Kn[A + B \exp(-C/Kn)], \quad (1.29)$$

où A , B et C sont des constantes respectivement égale à 1,165, 0,483 et 0,997 (Kim *et al.*, 2005), pour des conditions normales de température et de pression.

On arrive donc à l'expression de la vitesse de thermophorèse :

$$\bar{V}_{th} = -K_{ta} \frac{\eta_g}{\rho_g T} \bar{\nabla} T \text{ avec } K_{ta} = 2C_s \frac{k_g/k_p + C_t Kn}{1 + 2k_g/k_p + 2C_t Kn} \cdot \frac{Cu}{1 + 3C_m Kn}, \quad (1.30)$$

où k_g et k_p représentent les conductivités thermiques du gaz et de la particule.

1.5.5. Expression de Yamamoto

Une étude théorique a été menée par Yamamoto et Ishihara (1988), afin d'exprimer la force de thermophorèse subie par une particule sphérique isolée. L'étude est basée sur une analyse numérique et réalisée pour plusieurs nombres de Knudsen K ($0,01 < K < 50$) avec $K = Kn(\sqrt{\pi}/2)$.

Santachiara et Prodi (2002) ont déduit des travaux de Yamamoto et Ishihara (1988) une expression du coefficient de thermophorèse :

$$K_{yamamoto} = \frac{2}{A_s Kn} \frac{\left[A_w H_o - A_o \left(H_w + \left(\frac{5\sqrt{\pi}}{4} \right) \left(\frac{Kn}{\frac{k_p}{k_g}} \right) \right) \right]}{\left(H_w + \left(\frac{5\sqrt{\pi}}{4} \right) \right) \left(\frac{Kn}{\frac{k_g}{k_p}} \right)}, \quad (1.31)$$

où A_s , A_w , A_o , H_s , H_w , H_o représentent des variables dépendant du nombre de Knudsen Kn . Leurs valeurs sont tabulées dans l'article original et données dans l'annexe A.

Constatant que la force de traînée proposée par Yamamoto et Ishihara (1988) est surestimée par rapport à la formule de Millikan (relation 1.28), Sagot *et al.* (2009) proposent une expression différente du coefficient de thermophorèse de Yamamoto et Ishihara (1988). Pour cela, ils utilisent conjointement la force de thermophorèse proposée par Yamamoto et Ishihara (1988) et l'expression de la force de traînée de Millikan pour arriver à une expression du coefficient de thermophorèse sous la forme :

$$K_{yamamoto, Millikan} = Cu \frac{\sqrt{\pi}}{Kn} \frac{\left[A_w H_o - A_o \left(H_w + \left(\frac{5\sqrt{\pi}}{4} \right) \left(\frac{Kn}{\frac{k_p}{k_g}} \right) \right) \right]}{\left(H_w + \left(\frac{5\sqrt{\pi}}{4} \right) \right) \left(\frac{Kn}{\frac{k_g}{k_p}} \right)}. \quad (1.32)$$

Avec cette approche, le coefficient de thermophorèse de Yamamoto et Ishihara (1988) fournit des résultats en accord avec les deux limites asymptotiques des modèles d'Epstein et de Waldmann.

1.5.6. Expression de Beresnev

Beresnev et Chernyak (1995) ont proposé une théorie basée sur le même modèle utilisé par Yamamoto et Ishihara (1988). Contrairement à l'étude de Yamamoto et Ishihara (1988), Beresnev et Chernyak (1995) ont introduit dans leur étude les coefficients d'accommodation α_t et α_m afin de prendre en compte la façon dont les molécules sont réfléchies par la surface de la particule.

De ces résultats, Sagot *et al.* (2009) retirent une expression du coefficient de thermophorèse correspondant au modèle développé par Beresnev et Chernyak :

$$K_{\text{Beresnev}} = \frac{6 \left[\left[\alpha_t + \frac{15\sqrt{\pi}}{8} (1 - \alpha_t) / \left(\frac{k_g}{k_p} R \right) \right] \Phi_1 + \alpha_t \frac{k_p}{k_g} \Phi_2 \right]}{(8 + \pi) \left[\left[\alpha_t + \frac{15\sqrt{\pi}}{8} (1 - \alpha_t) / \left(\frac{k_g}{k_p} R \right) \right] \Phi_3 + \left[\alpha_t + \frac{5\sqrt{\pi}}{8} (3 - \alpha_t) / \left(\frac{k_g}{k_p} R \right) \right] \Phi_4 \right]} \left(\frac{F_3 + (1 - \alpha_t) F_4}{F_1 + (1 - \alpha_t) F_2} \right), \quad (1.33)$$

avec :

- $\Phi_k = f_{k1} + (1 - \alpha_m) f_{k2} + (1 - \alpha_m) f_{k3}, \quad k=1, \dots, 4,$
- $F_k = \varphi_{k1} + (1 - \alpha_m) \varphi_{k2}, \quad k=1, \dots, 4,$
- $R = \frac{\sqrt{\pi}}{\left(\frac{3\eta_g C_p}{\lambda_g} \text{Kn} \right)},$

où η_g , ρ_g et C_p représentent respectivement la viscosité dynamique, la masse volumique et la capacité calorifique du gaz porteur. Les valeurs de f_{k1} , f_{k2} , f_{k3} , φ_{k1} , et φ_{k2} sont représentées en fonction de R dans les tables données dans l'annexe B.

1.5.7. Expression de Bakanov

Bakanov (2005) a développé une nouvelle expression du coefficient de thermophorèse dépendant de la valeur du nombre de Knudsen et des coefficients d'accommodation. Cette relation n'est valable que pour des nombres de Knudsen inférieurs à 0,1 :

$$K_{\text{Bakanov}} = \frac{C_s}{1 + \frac{1}{2} \frac{k_p}{k_g}} \left(1 + \frac{k_g}{k_p} \text{Kn} \left[\frac{1}{2} C_t + \frac{3}{C_s} \left(\frac{1}{4} C_t - C_m \right) \right] \right), \quad (1.34)$$

où C_s peut varier entre 0,75 et 1,1225.

1.6. Coefficients liés aux facteurs d'accommodation

Comme présenté dans la partie 1.2., les facteurs d'accommodation décrivent la nature de la réflexion moléculaire à la surface de la particule. Cette réflexion a une influence sur le profil de vitesses et de températures au voisinage de la particule. L'incidence des facteurs d'accommodation α_t et α_m sur les champs de vitesses et de températures est traduit par les coefficients C_s , C_m et C_t .

1.6.1. Le coefficient de glissement thermique C_s

Ce coefficient est lié au profil de la vitesse du gaz dans la couche limite de la particule qui s'exprime selon la relation 1.14 vue précédemment :

$$V_\theta = C_s \frac{\eta_g}{\rho_g T} \text{Kn} \left(\frac{\partial T}{\partial \theta} \right)_{r=r_p}.$$

L'expression de la vitesse au voisinage de la particule dépend du profil de distribution de température. Maxwell donna la première valeur du coefficient de glissement thermique, utilisée notamment par Epstein dans son coefficient thermophorétique : $\frac{3}{4}$.

Ivchenko et Yalamov (1971) en donnèrent une expression dépendant du facteur d'accommodation thermique :

$$C_s = \frac{3}{2} \cdot \frac{0,6264 + 0,3736\alpha_t}{1,2528 + 0,0306\alpha_t} \quad (1.35)$$

Ce qui conduit, pour une accommodation thermique complète à la valeur $C_s = 1,169$.

Derjaguin *et al.* (1976) corrigent la valeur de C_s utilisé par Epstein et montrent que la faiblesse des forces de thermophorèse déterminées par Brock provient en partie de la faible valeur du coefficient C_s qui contraint Brock à utiliser des valeurs trop élevées pour les coefficients C_t et C_m . Il propose :

$$C_s = 1,1 \pm 0,1.$$

1.6.2. Le coefficient C_t

Ce coefficient est associé à la discontinuité de température entre la surface de la particule et le gaz et s'exprime par la relation :

$$T - T_p = C_t \lambda_g \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r=r_p} \quad (1.36)$$

Pour les molécules monoatomiques, le coefficient peut être représenté par la relation :

$$C_t = \frac{15}{8} \cdot \frac{2 - \alpha_t}{\alpha_t} \quad (1.37)$$

Loyalka (1968) généralise l'expression aux autres molécules :

$$C_t = \frac{15}{8} \cdot \frac{2 - \alpha_t}{\alpha_t} (1 + 0,1621\alpha_t), \quad (1.38)$$

ce qui donne, pour une accommodation thermique complète, la valeur $C_t = 2,18$.

1.6.3. Le coefficient C_m

De façon analogue, le coefficient C_m est associé à la discontinuité de vitesse qui existe entre la surface de la particule et le gaz. Pour une particule sphérique, la composante tangentielle V_θ de la vitesse à la surface de la particule s'exprime par :

$$V_\theta = C_m \lambda_g \left[r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{V_\theta}{r} \right) + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial V_r}{\partial \theta} \right) \right]_{r=r_p} + C_s \frac{\eta_g}{\rho_g T} \text{Kn} \left(\frac{\partial T}{\partial \theta} \right)_{r=r_p}.$$

De même que C_t caractérise le profil de température, C_m caractérise le profil de vitesse au voisinage de la particule.

Pour des molécules monoatomiques et des surfaces planes, le coefficient C_m peut s'exprimer par la relation :

$$C_m = \frac{2 - \alpha_m}{\alpha_m} \quad (1.39)$$

1.7. Récapitulatif des différentes expressions de la vitesse de thermophorèse V_{th}

La vitesse de thermophorèse peut s'exprimer sous la forme de la relation 1.40 ce qui implique qu'elle est directement proportionnelle au coefficient de thermophorèse K_{th} :

$$\bar{V}_{th} = -K_{th} \frac{\eta_g}{\rho_g T_g} \nabla T, \quad (1.40)$$

où η_g , ρ_g et T_g sont respectivement la viscosité dynamique, la masse volumique et la température du gaz, ∇T le gradient de température, et K_{th} le coefficient adimensionnel dépendant de la taille

de la particule, du rapport des conductivités thermiques du gaz et de la particule ainsi que des interactions gaz-particules.

Le tableau 1.1 rassemble les différentes expressions du coefficient de thermophorèse présentées dans ce chapitre.

Tableau 1.1 : Tableau récapitulatif des expressions du coefficient de thermophorèse K_{th}

Facteur K_{th}	Auteur	Domaine de validité
$K_{th} = \frac{3}{4} \frac{1}{1 + \frac{\pi}{8} \alpha_m}$	Waldmann et Schmitt (1966)	$Kn \gg 1$
$K_{th} = \frac{3}{4} \frac{1}{1 + \frac{\pi}{8} \alpha_m} \exp \left(\frac{0,09 + 0,12\alpha_m + 0,28\alpha_m \left(\alpha_t \frac{k_g}{k_p} - 1 \right)}{Kn} \right)$	Brock (1967)	$Kn > 0,2$; forte dépendance du facteur d'accommodation moléculaire
$K_{th} = 2C_s \frac{k_g / k_p + C_t Kn}{1 + 2k_g / k_p + 2C_t Kn}$	Derjaguin et Yalamov (1965)	$Kn < 1$ avec C_s égale à 1,1 et C_t égale à 2,17
$K_{th} = \frac{K_{der}}{1 + 2C_m Kn}$	Brock (1962)	$Kn < 0,2$ (C_s ; C_t ; C_m) = (3/4; 2,16; 1)
$K_{th} = 2C_s \frac{K_g}{2k_g + k_p}$	Epstein (1929)	$Kn \ll 1$ $C_s = 3/4$
$K_{th} = \frac{K_{der} Cu}{1 + 3C_m Kn}$	Talbot <i>et al.</i> (1980)	(C_s ; C_t ; C_m) = (1,147; 2,2; 1,146)
$K_{th} = \frac{C_s}{1 + \frac{1}{2} \frac{k_p}{k_g}} \left(1 + \frac{k_g}{k_p} Kn \left[\frac{1}{2} C_t + \frac{3}{C_s} \left(\frac{1}{4} C_t - C_m \right) \right] \right)$	Bakanov (2005)	$Kn < 0,1$ $0,75 < C_s < 1,1225$
$K_{th, Beresnev}$ Cf. eq. 1.33	Beresnev et Chernyak (1995)	$0 < Kn < \infty$
$K_{th, Yamamoto}$ Cf. eq. 1.31 ou 1.32	Yamamoto et Ishihara (1988)	$0 < Kn < \infty$

La figure 1.8 illustre les domaines de validité des différents coefficients de thermophorèse présentés en fonction du nombre de Knudsen Kn calculé aux conditions standards de température et de pression. La figure 1.8 illustre également la dispersion en taille des particules non sphériques comme les agrégats ainsi que la dispersion en taille des particules primaires pouvant composer ces agrégats (Ouf, 2006). Pour des agrégats définis par un nombre de Knudsen compris entre 0,2 et 3, on peut remarquer que les équations de Bakanov, Brock et Waldmann ne peuvent être appliquées au cas des agrégats.

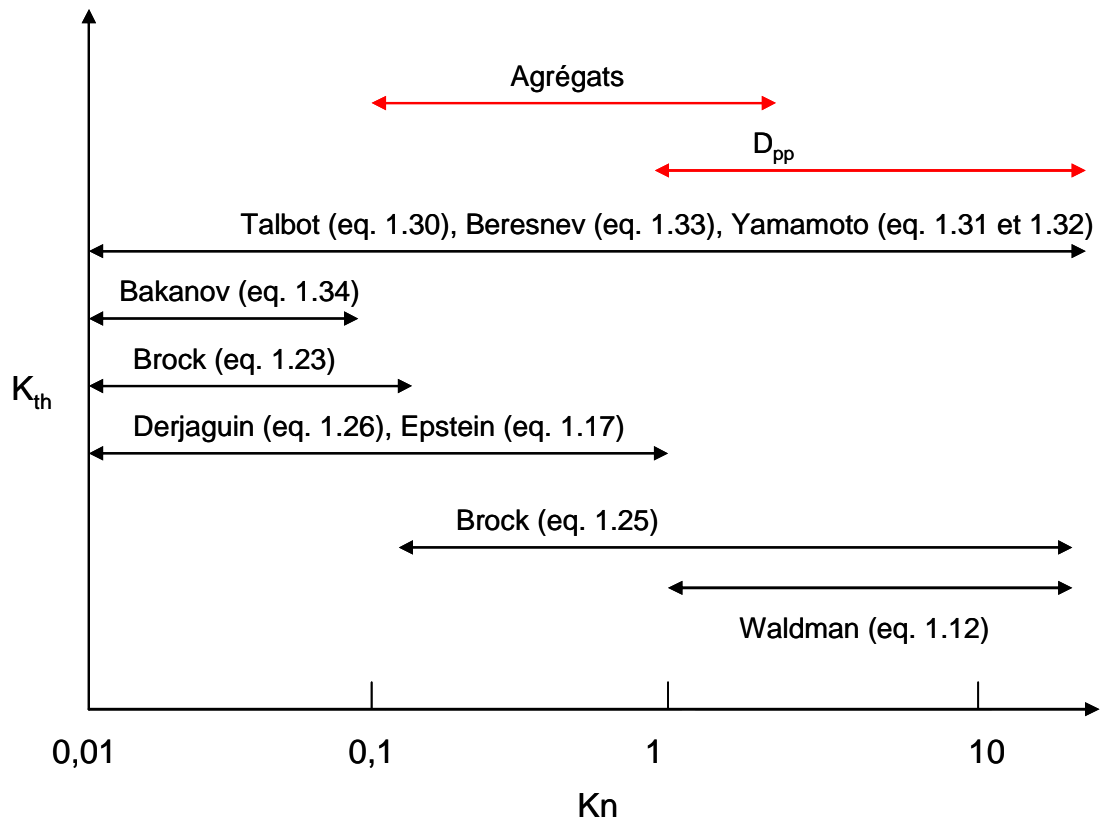


Figure 1.8 : Domaine de validité des coefficients de thermophorèse K_{th} comparé aux domaines de validité pour des particules non sphériques comme les agrégats

1.8. Influence de la conductivité thermique sur la vitesse de thermophorèse

Pour les diamètres supérieurs au libre parcours moyen du gaz porteur, le mécanisme de thermophorèse doit prendre en compte le gradient de température à l'intérieur de la particule. Ce gradient est d'autant plus important que la particule est peu conductrice.

Nous présentons sur les figures 1.9 à 1.12 l'influence de la conductivité thermique sur le coefficient de thermophorèse pour les modèles de Beresnev et Talbot qui couvrent l'ensemble des nombres de Knudsen et pour les limites asymptotiques de Waldmann et d'Epstein. Des figures 1.9 à 1.12, on peut faire deux observations :

D'une part, on observe lorsque le rapport $\frac{k_g}{k_p}$ est inférieur à 1 une augmentation du coefficient de thermophorèse avec le nombre de Knudsen. Pour des nombres de Knudsen supérieurs à 2, le coefficient de thermophorèse devient indépendant du rapport de conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ et de la taille des particules. En comparant les figures 1.9 et 1.10, on peut également

remarquer l'augmentation du coefficient de thermophorèse lorsque le rapport $\frac{k_g}{k_p}$ augmente.

D'autre part, on observe sur les figures 1.11 et 1.12 que l'évolution du coefficient de thermophorèse s'inverse, ainsi celui-ci diminue lorsque le nombre de Knudsen augmente. On obtient donc pour un rapport de conductivité thermique $\frac{k_g}{k_p}$ supérieur ou égal à 1 une augmentation du coefficient de thermophorèse avec l'augmentation de la taille des particules.

Le tableau 1.2 présente quelques conductivités thermiques pour différents matériaux.

Tableau 1.2 : Conductivité thermique de différents matériaux, Hinds (1999)

Matériaux	Conductivité thermique (W/m.K)
Air (20 °C)	0,026
Paraffine	0,13
Oxide de magnesium	0,13
Bille latex	0,14
Eau	0,59
Verre	0,84
Carbone	4,2
NaCl	6,6
Mercure	8,4
Quartz	9,6
Oxide d'aluminium	30

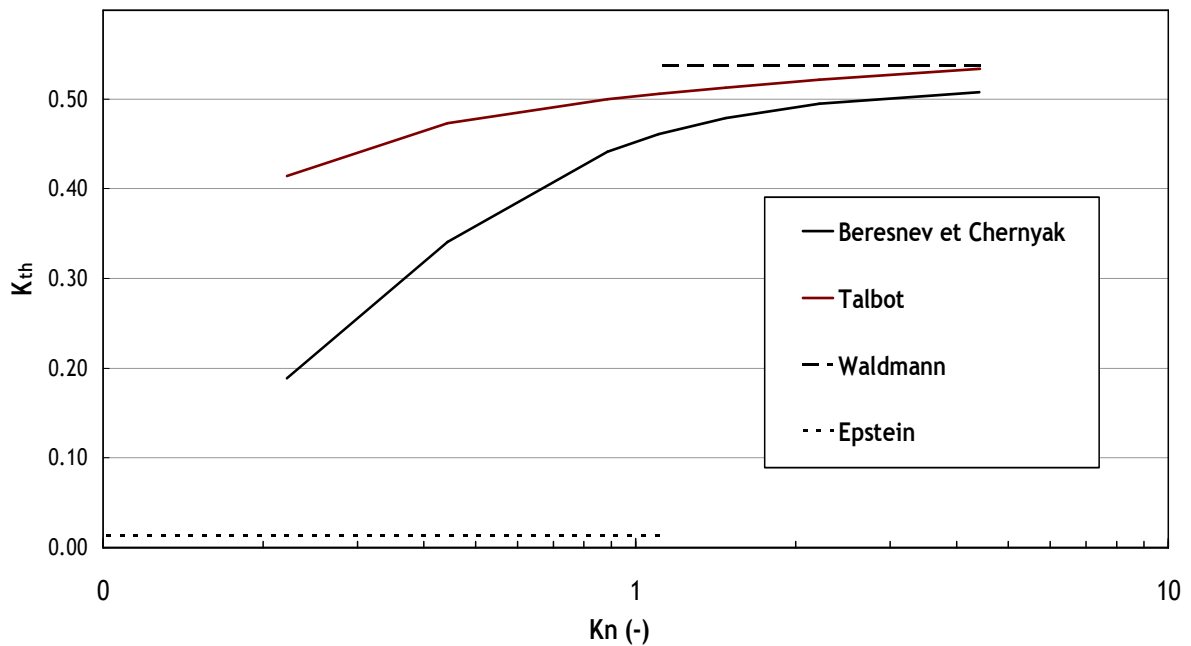


Figure 1.9 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 0,01.

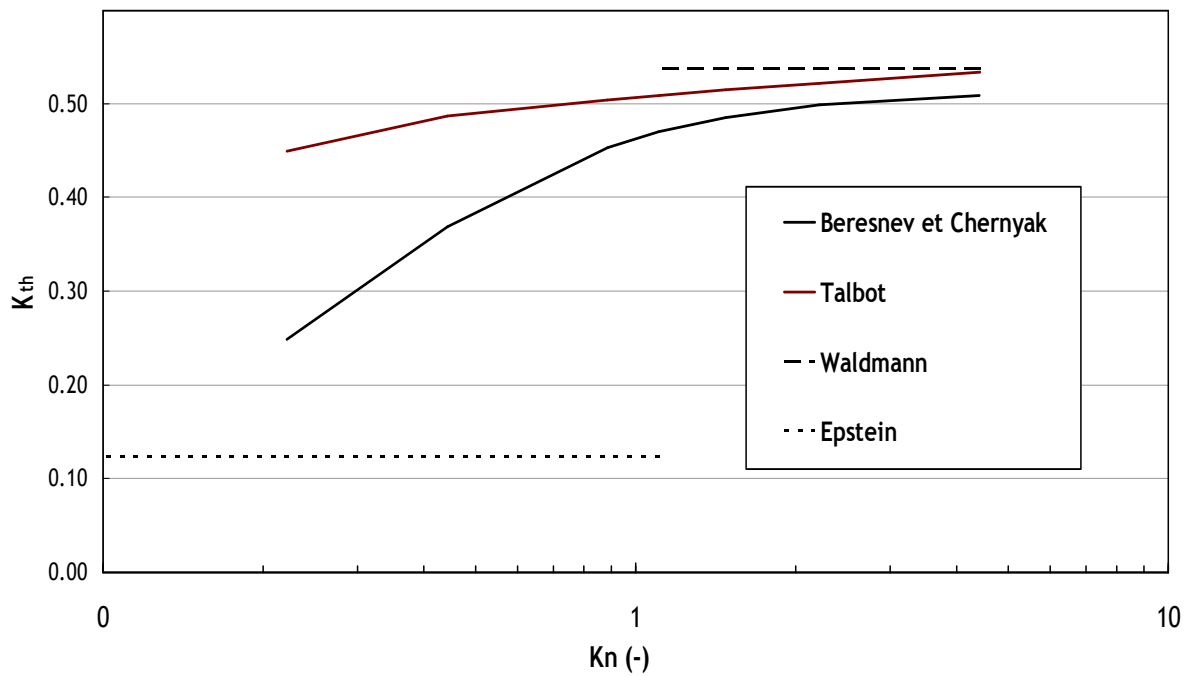


Figure 1.10 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 0,1.

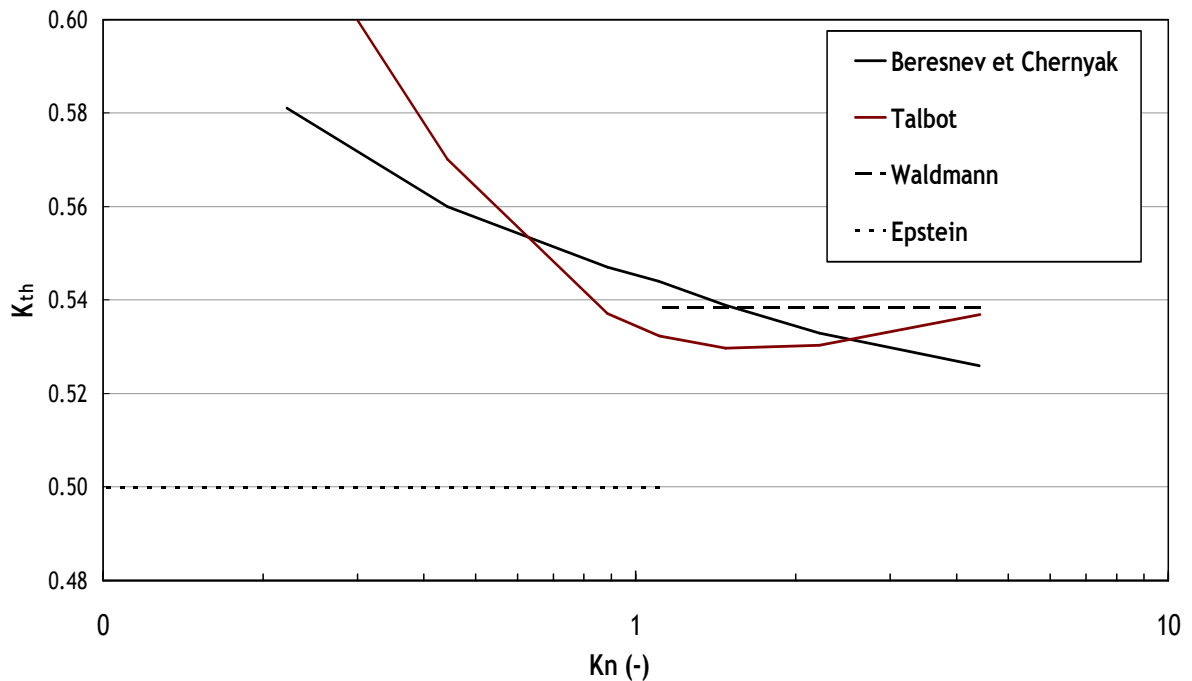


Figure 1.11 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 1.

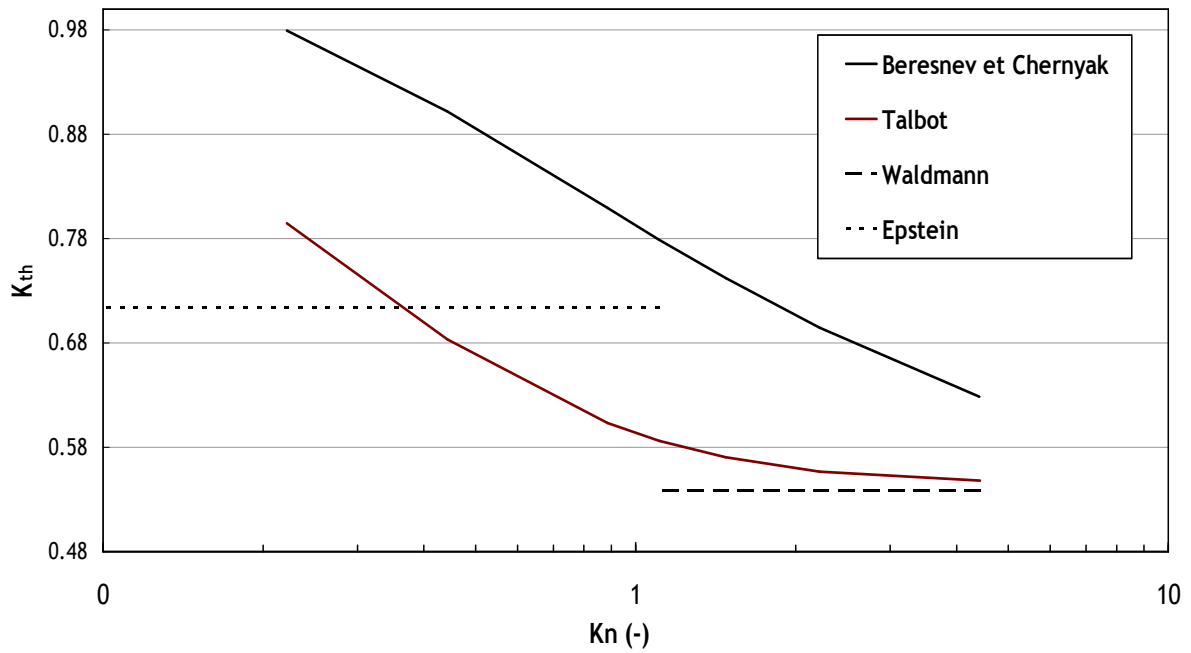


Figure 1.12 : Représentation des coefficients de thermophorèse K_{th} en fonction du nombre de Knudsen pour un rapport des conductivités thermiques $\frac{k_g}{k_p}$ égal à 10.

Certains auteurs affirment que le rapport $\frac{k_g}{k_p}$ pourrait, pour un certain nombre de Knudsen, inverser le signe de la force de thermophorèse ; on parle alors de « thermophorèse inversée ». Cette théorie a été proposée pour la première fois par Sone (1972) et reprise ensuite par de nombreux auteurs dont Yamamoto et Ishihara (1988), Bakanov (1991), Beresnev et Chernyak (1995), ou plus récemment Healy et Young (2010).

Dans leurs études, Beresnev et Chernyak (1995) distinguent l'influence du rapport de la conductivité thermique de la particule sur celle du gaz $\frac{k_p}{k_g}$ en trois domaines :

- lorsque $\frac{k_p}{k_g}$ est inférieur à 0,1 ; nous sommes dans le domaine où la conductivité thermique de la particule est faible et où la force de thermophorèse est faiblement dépendante de la valeur de $\frac{k_p}{k_g}$,
- lorsque $0,1 < \frac{k_p}{k_g} < 100$, nous sommes dans le domaine où la conductivité thermique de la particule est considérée comme modérée et où la force de thermophorèse diminue lorsque $\frac{k_p}{k_g}$ augmente,

- lorsque $\frac{k_p}{k_g} > 100$, nous sommes dans le domaine où la conductivité thermique de la particule est considérée comme élevée et où la force de thermophorèse est de nouveau considérée comme indépendante du rapport $\frac{k_p}{k_g}$.

Une inversion du signe de la force de thermophorèse et de la vitesse de thermophorèse est remarquée dans le troisième groupe pour des particules dans un régime de faible nombre de Knudsen. Ce phénomène est appelé « thermophorèse inversée » et implique que la force de thermophorèse agit dans la direction du gradient de température.

Yamamoto et Ishihara (1988) ont modélisé les vecteurs vitesses et les lignes du champ thermique provoqués par une particule soumise à un gradient de température pour différents rapports de conductivités thermiques $\frac{k_p}{k_g}$. Leurs résultats sont présentés sur la figure 1.13 où on peut observer les lignes de courant du fluide et les isothermes du champ de température du gaz et d'une particule avec un nombre de Knudsen égal à 0,1. Sur la figure 1.13, on observe que le profil de température à l'intérieur de la particule est fortement dépendant du rapport $\frac{k_p}{k_g}$. En effet, pour

un $\frac{k_p}{k_g}$ faible, le profil de température à l'intérieur de la particule est assez proche de celui du

gaz ; par contre, plus le rapport $\frac{k_p}{k_g}$ devient important, plus le profil de température de la particule

est uniforme. Pour les lignes de courant autour de la particule, la figure 1.13 montre, d'une part que la particule crée un écoulement autour d'elle et que cet écoulement est amorcé par la surface de la particule, d'autre part que la norme des vecteurs vitesses de cet écoulement diminue lorsque $\frac{k_p}{k_g}$ augmente. Le phénomène de thermophorèse inversée ou négative est observé pour un rapport

$\frac{k_p}{k_g}$ égal à 100. On remarque en effet que l'écoulement autour de la particule, provoqué par la surface de celle-ci, est inversé pour un rapport égal à 100 : la norme des vecteurs vitesses de l'écoulement devient négative.

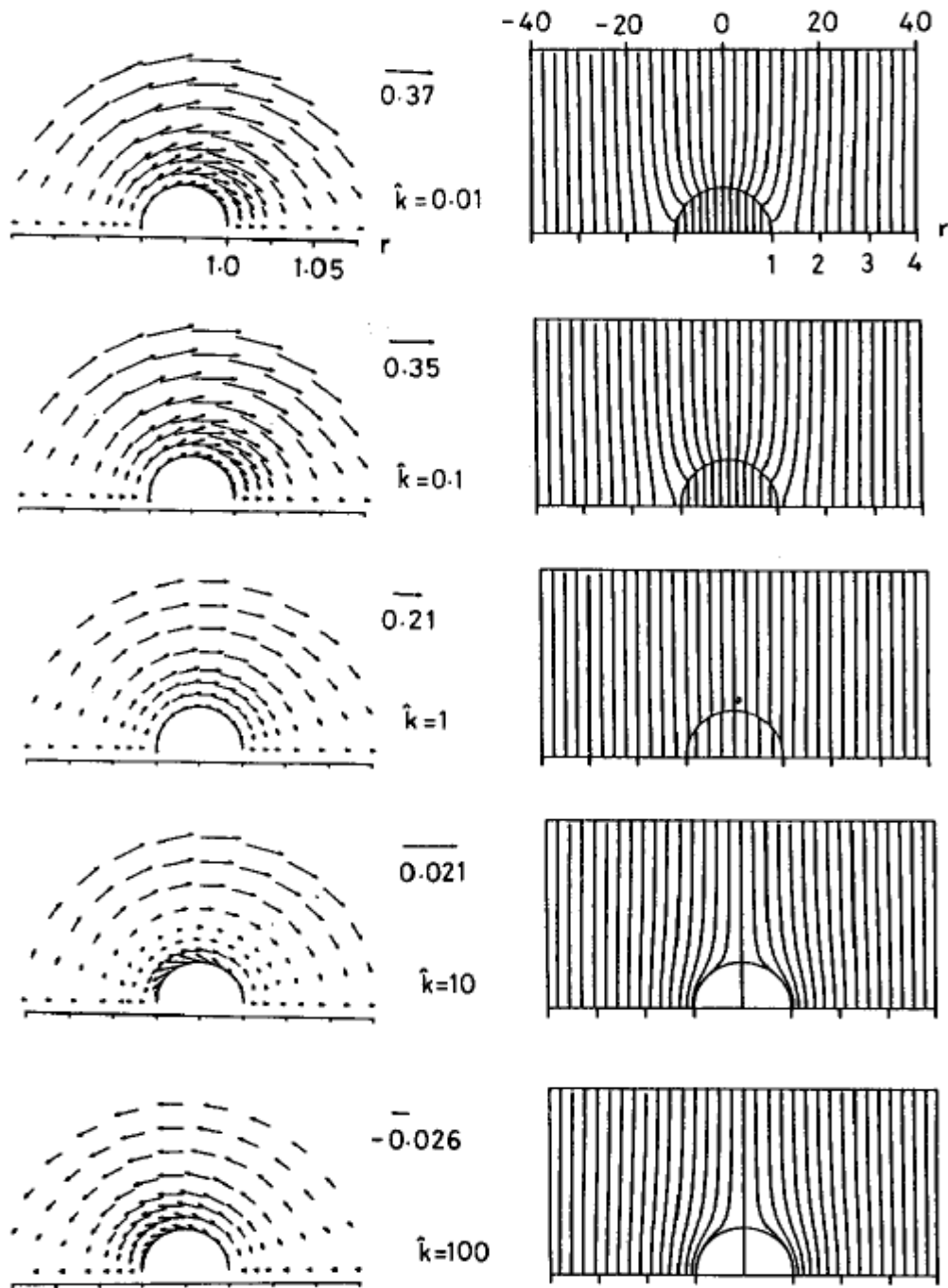


Figure 1.13 : Vecteur vitesse et champ de température pour un nombre de Knudsen égal à 0,1

(Yamamoto et Ishihara, 1988), avec $\hat{k} = \frac{k_p}{k_s}$.

Nous venons, dans les sous-chapitres 1.4 à 1.8, de faire une synthèse des connaissances et relations disponibles dans la littérature pour exprimer le phénomène de thermophorèse pour des particules sphériques. Nous avons exposé les différences à prendre en considération pour l'expression de la vitesse de thermophorèse entre le domaine moléculaire et le domaine continu. En effet, Waldmann et Schmitt (1966) ont montré que, dans le régime moléculaire, la vitesse de thermophorèse est indépendante de la taille de la particule. Pour le domaine intermédiaire et continu, il existe différentes expressions de la vitesse de thermophorèse dont les expressions de Brock (1962), Epstein (1929), Derjaguin et Yalamov (1965) et Talbot *et al.* (1980) qui permet

d'exprimer le coefficient ou la vitesse de thermophorèse sur l'ensemble du régime de Knudsen et, de plus, qui est la relation la plus utilisée dans la littérature. On a pu constater que l'interaction entre les molécules du gaz et la surface de la particule, définie par les facteurs d'accommodation, caractérise l'expression de la vitesse de thermophorèse. La vitesse de thermophorèse dépend également du rapport des conductivités thermique du gaz et de la particule, notamment lorsque la taille des particules augmente.

1.9. Morphologie des particules de suies : les agrégats

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la théorie de la thermophorèse est établie, dans la plupart des cas, pour des particules de forme idéale sphérique. Leur taille peut être caractérisée par un unique paramètre qui est le diamètre géométrique de la particule d_p .

Cependant, les aérosols rencontrés habituellement, comme ceux émis lors d'incendie, ont une morphologie bien plus complexe et il devient alors difficile de les caractériser. Pour résoudre ce problème, la notion de diamètre équivalent a été introduite.

Le diamètre équivalent correspond au diamètre d'une particule sphérique qui a des propriétés similaires à celles de la particule de forme quelconque étudiée, par exemple la mobilité électrique, la vitesse de chute terminale, la masse ou le volume.

1.9.1. Diamètre équivalent en volume

Le diamètre équivalent en volume est défini par le diamètre de la sphère ayant le même volume total que la particule ; ainsi pour un agrégat composé de N_p particules primaires non fusionnées, nous avons :

$$D_{ev} = N_p^{1/3} D_{pp}, \quad (1.41)$$

où N_p représente le nombre de particules primaires et D_{pp} le diamètre des particules primaires.

Ce diamètre équivalent en volume peut être pratique lorsqu'on cherche à établir la masse de l'agrégat m_a qui s'exprime par la relation :

$$m_a = \frac{\pi}{6} \rho_{pp} D_{ev}^3, \quad (1.42)$$

où ρ_{pp} représente la masse volumique des particules primaires.

1.9.2. Diamètre de giration

Le diamètre de giration fournit une indication sur la répartition de la masse autour du centre de gravité de l'agrégat. Ce diamètre correspond à la moyenne des carrés des distances (d_i) entre les particules primaire et le centre de masse de l'agrégat.

$$D_g^2 = \frac{4}{N_{pp}} \sum_i d_i^2. \quad (1.43)$$

1.9.3. Le facteur de forme dynamique

Ce paramètre est souvent utilisé pour définir la forme d'une particule. Il permet de représenter l'influence de la forme d'une particule sur la force de traînée exercée sur celle-ci. Le facteur de forme dynamique est défini comme étant le rapport entre la force de traînée exercée sur la particule non sphérique considérée et la force de traînée exercée sur la particule sphérique de volume équivalent lorsque les deux se déplacent à la même vitesse relative par rapport au gaz. Elle s'exprime par la relation :

$$\chi = \frac{F_{traînée}^p}{F_{traînée}^{ev}}. \quad (1.44)$$

Pour des particules de formes non sphériques, la valeur de ce facteur est supérieure à 1 et pour des particules sphériques, il est logiquement de 1.

1.9.4. Diamètre de mobilité électrique

Le diamètre de mobilité électrique est défini comme étant le diamètre de la sphère, portant une charge électrique, de même mobilité électrique Z que la particule. La mobilité électrique s'exprime par la relation :

$$Z = \frac{V_{TE}}{E} = NeB = \frac{NeCu}{3\pi\eta_g D_m}, \quad (1.45)$$

où :

V_{TE} : vitesse terminale électrostatique,

E : intensité du champ électrique,

N : nombre de charges élémentaires portées par la particule,

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

Cu : coefficient de correction de Cunningham,

η_g : viscosité dynamique du gaz,

D_m : diamètre de mobilité électrique.

La mobilité électrique Z est reliée à la mobilité dynamique B par la relation :

$$Z = N.e.B. \quad (1.46)$$

1.9.5. La dimension fractale D_f

La dimension fractale est un nombre réel positif, caractérisant la manière dont la masse d'un objet est répartie dans l'espace, elle permet de quantifier la compacité d'un objet. Si l'objet est de longueur L et que l'on puisse reporter N fois un étalon de longueur n sur l'objet, on détermine sa dimension fractale par la relation :

$$D_f = \frac{\ln N}{\ln\left(\frac{L}{n}\right)}. \quad (1.47)$$

La détermination de cette dimension peut être réalisée à l'aide de différentes méthodes. On pourra noter des techniques basées sur la mesure de la diffusion de la lumière pour deux angles différents, l'analyse aérodynamique ou encore l'analyse de clichés obtenus à l'aide d'un microscope électronique à transmission (MET). Pour cette dernière, on établit une 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 (avec N_p , R_g et R_{pp} le nombre de particules primaires, le rayon de giration et le rayon des particules primaires). Une dimension fractale proche de 2 représente une surface assez aérée, tandis qu'une dimension fractale proche de 3 représente un volume assez compact. La figure 1.14 présente la morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes.

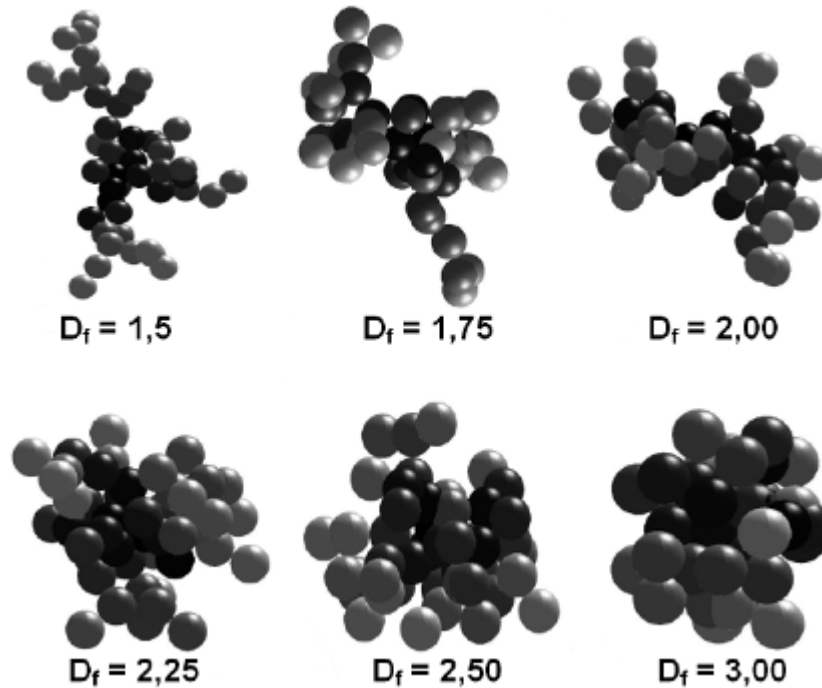


Figure 1.14 : Morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes (Ouf, 2006)

1.9.6. Nombre de particules primaires

Le nombre de particules primaires composant un agrégat peut être relié au préfacteur (k_f), à la dimension fractale (D_f), au diamètre de giration (D_g) et au diamètre des particules primaires (D_{pp}) par la relation quasi-fractale (Jullien et Botet, 1987) :

$$N_{pp} = K_f \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f} \quad (1.48)$$

1.9.7. Diamètre des particules primaires

La particule primaire est le composant élémentaire d'un agrégat, ce qui implique la connaissance de sa taille. La figure 1.15 présente la distribution granulométrique des particules primaires pour un agrégat de suie issu de la combustion de toluène. On remarque que la loi de distribution est de type gaussien et qu'elle montre une dispersion en taille des particules (de 50 nm à 90 nm).

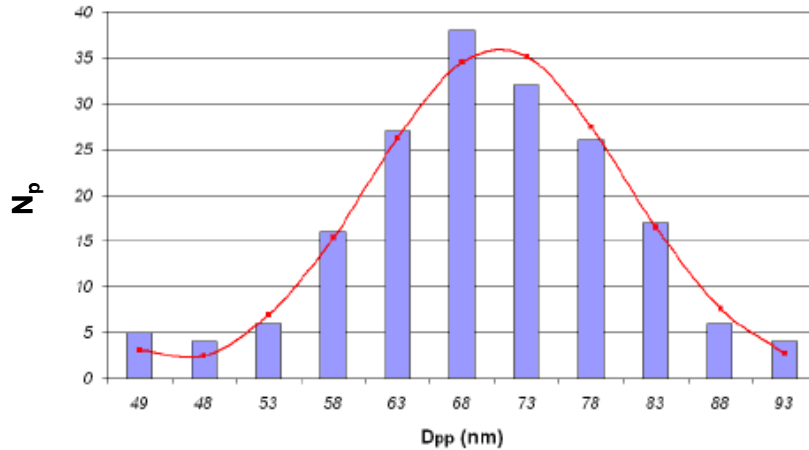


Figure 1.15 : Distribution granulométrique des particules primaires pour un ensemble d'agrégats issus de suie de la combustion de toluène (Ouf, 2006)

1.9.8. Synthèse

Dans ce paragraphe, nous faisons une synthèse des diamètres présentés dans ce chapitre pour caractériser les agrégats. Ainsi, la figure 1.16 représente un agrégat avec les diamètres le définissant, à savoir le diamètre de l'agrégat $D_{\text{agrégat}}$ (défini comme étant le diamètre géométrique de l'agrégat), le diamètre de giration D_g , le diamètre de mobilité électrique D_m , le diamètre équivalent en volume D_{ev} , le diamètre aérodynamique D_a et le diamètre des particules primaires D_p . Dans le cadre de l'étude de la thermophorèse, il reste à connaître l'impact que peut avoir la forme d'un agrégat sur son comportement thermophorétique et quel diamètre équivalent doit être utilisé.

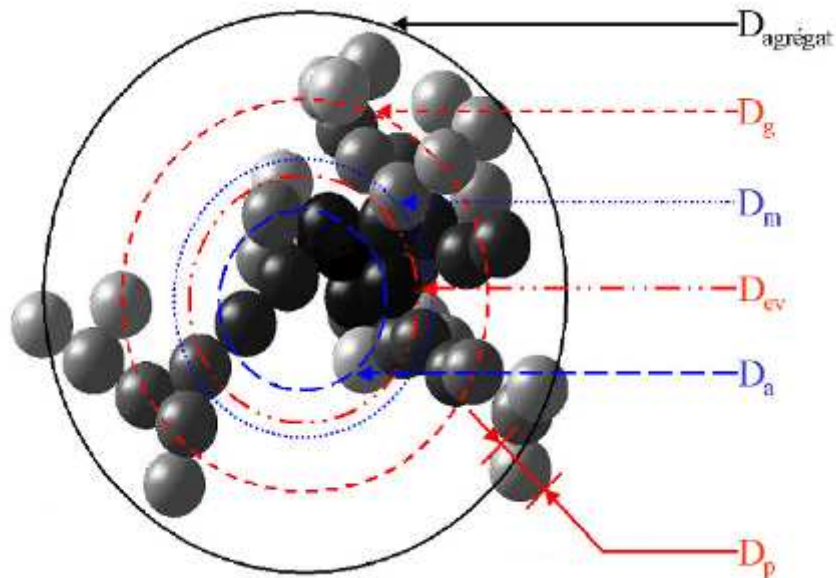


Figure 1.16 : Diamètres caractéristiques d'un agrégat (Ouf, 2006)

1.10. Influence de la forme d'une particule non-sphérique et de son orientation sur la vitesse de thermophorèse

La thermophorèse appliquée à des particules non sphériques est bien plus complexe que pour des particules sphériques. Nous avons vu précédemment que la taille des particules non sphériques peut être caractérisée par des diamètres équivalents ou des dimensions physiques liées à la morphologie fractale de la particule.

Nous allons voir dans cette section que les solutions théoriques pour exprimer la vitesse de thermophorèse d'un agrégat sont plus compliquées et que des paramètres additionnels sont nécessaires tels que la forme de la particule ou son orientation dans un champ de température. Les connaissances sur le comportement thermophorétique des particules non sphériques sont très limitées et il n'existe que peu d'approches théoriques permettant de le décrire dans le régime continu ou moléculaire. Qui plus est, il n'y a que très peu d'expériences disponibles pour valider ces différentes théories.

1.10.1. Régime continu

Plusieurs études ont été effectuées sur l'influence de la forme de la particule sur la force et la vitesse de thermophorèse. Ces études portent sur des formes simples comme des particules en forme de cylindre, de sphéroïde ou encore d'un agrégat composé de deux sphères.

Reed (1971) fut un des premiers à travailler sur une relation entre la forme de la particule et sa vitesse thermophorétique. Ses travaux de thèse, portant sur une étude théorique d'une particule cylindrique dans le régime continu, ont montré que la vitesse de thermophorèse de cette particule cylindrique orientée perpendiculairement au gradient de température équivalait à 55 % de celle d'une particule sphérique de même diamètre que le cylindre.

Leong (1984) obtient une solution analytique dans le régime continu pour la thermophorèse de sphéroïdes dont les axes de révolution sont parallèles au gradient de température. Il travaille pour cela avec des particules de formes oblate et prolata qui sont représentées dans la Figure 1.17. Les particules de formes oblate et prolata sont des ellipsoïdes de révolution. Le type "oblate" est obtenu par rotation d'une ellipse autour de son petit axe (donnant donc un volume "aplati") et le type "prolate" par rotation d'une ellipse autour de son grand axe (donnant donc un volume allongé). La Figure 1.18 montre la variation de vitesse de thermophorèse entre les particules de formes sphéroïdes et une particule sphérique. L'ordonnée de gauche exprime le rapport de vitesse entre une particule de forme oblate dont l'axe secondaire « b » est aligné avec le gradient de température et une particule sphérique de même diamètre que l'axe secondaire. L'ordonnée de droite exprime le rapport de vitesse entre une particule de forme prolata dont l'axe principal « a » est aligné avec le gradient de température et une particule sphérique de même diamètre que l'axe secondaire « b ». Ces valeurs sont données pour un ratio $\frac{k_s}{k_p}$ égal à 0,2. La figure 1.18 montre que

la vitesse de thermophorèse d'un sphéroïde oblate est inférieure à celle d'une sphère ; par contre une particule de forme sphéroïde prolata a une vitesse de thermophorèse supérieure à celle d'une sphère.

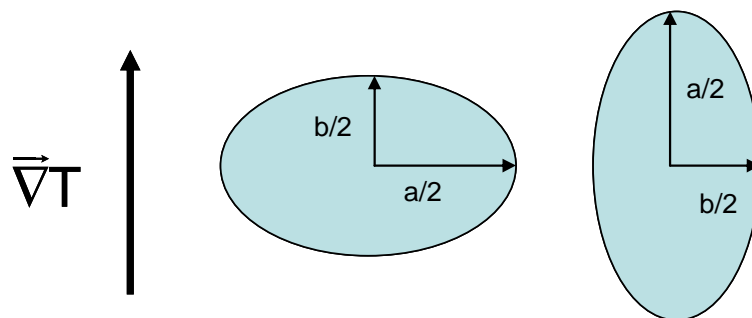


Figure 1.17 : Schéma représentatif d'un sphéroïde oblate (à gauche) et d'un sphéroïde prolata (à droite)

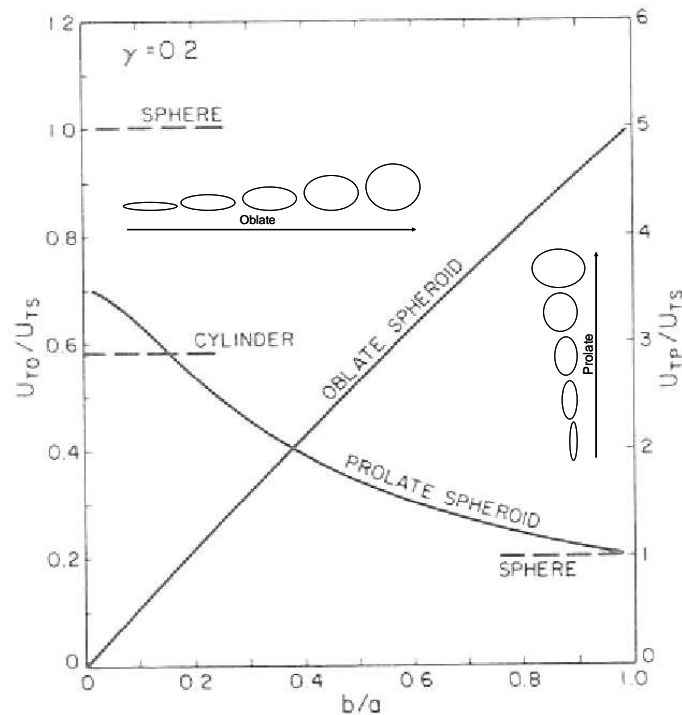


Figure 1.18 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'une particule de forme oblate ou prolata et une particule sphérique, en fonction du rapport b/a , Leong (1984)

De la même manière, Williams (1986) compare la vitesse de thermophorèse d'une particule de forme sphéroïde oblate ou prolata à la vitesse d'une particule sphérique de même volume. Il arrive au même résultat que Leong (1984) en montrant qu'une particule prolata a une vitesse de thermophorèse plus élevée qu'une particule sphérique alors qu'une particule oblate à une vitesse plus faible. Williams (1986) montre également l'influence de la conductivité thermique de ce type de particule sur la vitesse de thermophorèse. En effet pour une particule ayant une conductivité thermique 10 fois supérieure à celle du gaz, Williams constate les points suivants :

- la force de thermophorèse d'un sphéroïde oblate est 44 % plus faible que celle d'une particule de même volume et la vitesse est 51 % plus faible. Ces valeurs étant obtenues pour un ratio b/a égal à 0,5,
- la force de thermophorèse d'un sphéroïde prolata est 85 % plus grande que celle d'une particule de même volume et la vitesse est 94 % plus grande. Ces valeurs étant obtenues pour un ratio b/a égal à 0,5.

L'écart obtenu entre la particule sphérique et la particule de forme sphéroïde diminue lorsque l'écart entre la conductivité thermique de la particule et du gaz se réduit. Ce constat est observable sur la Figure 1.19 où sont représentés les rapports entre les forces et vitesses de thermophorèse d'une sphéroïde sur celles d'une sphère de même volume, pour différents ratio de conductivités thermiques.

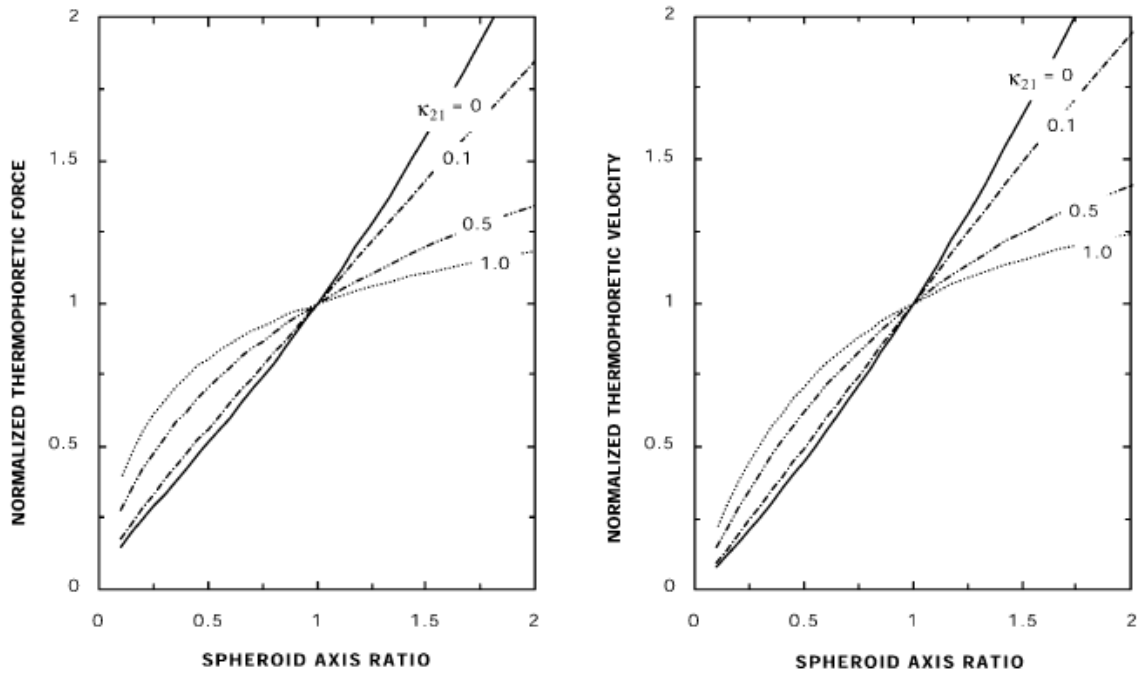


Figure 1.19 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'un sphéroïde et celle d'une particule sphérique de même volume en fonction du rapport b/a et pour différents rapports de conductivité thermique k_{21} dans le papier original (rapport entre la conductivité thermique du gaz sur la conductivité thermique de la particule), Williams (1986)

Williams (1987) est le premier à tenter une autre approche en étudiant la vitesse de thermophorèse d'une particule de forme plus complexe. Il obtient une approximation de cette vitesse pour un agrégat composé de deux particules primaires sphériques de diamètres identiques. Il trouve notamment que la force de thermophorèse sur ce type d'agrégat est 7,9 % plus grande que celle d'une sphère unique de même volume et que la vitesse de thermophorèse est 5,4 % plus grande en régime continu.

Rosner *et al.* (1991) ont également étudié les effets de la forme d'un agrégat sur la vitesse de thermophorèse. La vitesse de thermophorèse est reliée au gradient de température par le produit $\alpha_T D$ selon la relation :

$$\overline{V}_{th} = -\alpha_T D \frac{\overline{\nabla T}}{T}, \quad (1.49)$$

où D représente le coefficient de diffusion brownienne et α_T le facteur de diffusion thermique. Le produit $\alpha_T D$ représente la diffusivité thermophorétique : il est le produit du coefficient de thermophorèse K_{th} avec la viscosité cinématique ν_g du gaz et correspond donc à :

$$\alpha_T D = K_{th} \nu_g. \quad (1.50)$$

Leurs travaux portent sur des agrégats en forme de « paquet » et des agrégats en forme de « chaîne ». La Figure 1.20 compare la diffusivité thermophorétique de chaînes de particules primaires avec des paquets de particules primaires en forme de sphères et la diffusivité thermophorétique d'une particule primaire isolée, en fonction du nombre de particules primaires. On peut constater que la diffusivité thermophorétique d'une chaîne de particules primaires, alignée au gradient de température, est supérieure à celle d'une particule primaire sphérique isolée. Rosner montre aussi que la vitesse de thermophorèse d'une chaîne infinie parallèle et perpendiculaire au gradient de température est, respectivement, deux ou trois fois supérieure à celle d'une sphère isolée.

En moyennant les résultats de 10 orientations possibles de la chaîne de particules primaires, Rosner observe que la vitesse de thermophorèse est 10 % plus grande que celle d'une particule primaire isolée.

Par contre pour des agrégats en forme de paquet (random cluster sur la Figure 1.20), Rosner trouve une vitesse de thermophorèse 20 % plus petite que celle d'une particule isolée, ce qui est en accord avec la théorie montrant que l'effet de la thermophorèse diminue avec la taille d'une particule, un agrégat en forme de paquet pouvant être assimilé à une particule sphérique.

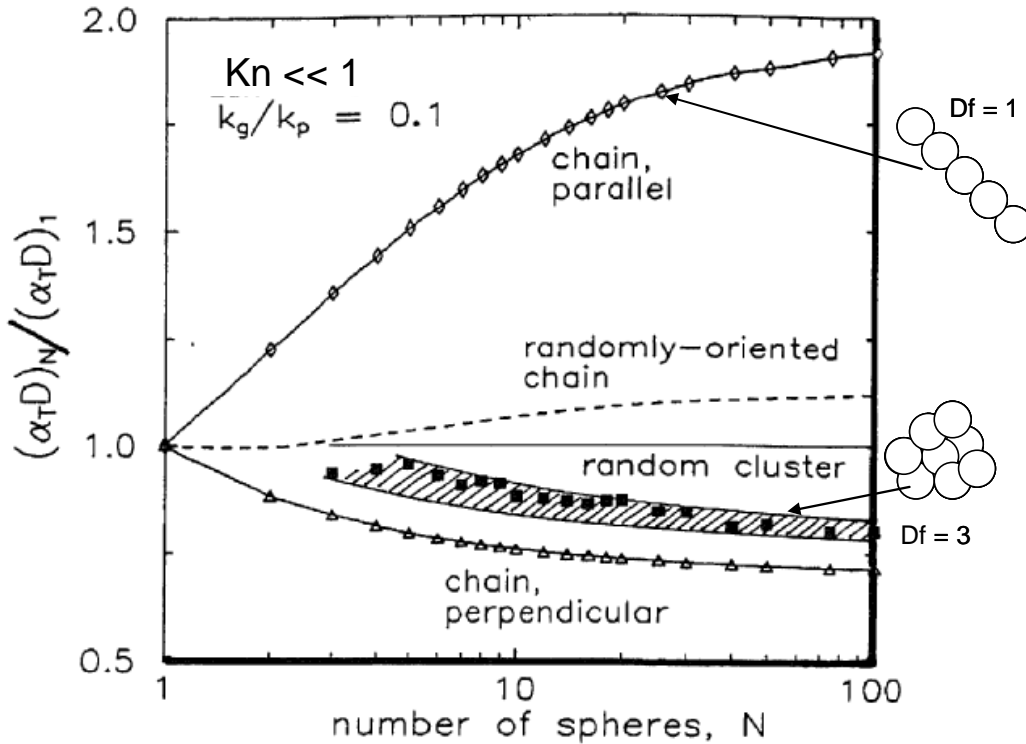


Figure 1.20 : Comparaison de la diffusivité thermophorétique de chaînes et de paquets de particules primaires par rapport à la diffusivité thermophorétique d'une particule primaire isolée, en fonction du nombre de particules primaires, Rosner *et al.* (1991)

1.10.2. Régime moléculaire

Pour l'étude de l'influence de la forme d'une particule sur sa vitesse de thermophorèse dans le régime moléculaire, deux travaux peuvent être cités :

- L'étude de Garcia-Ybarra et Rosner (1989).
- L'étude de Rosner *et al.* (1991).

L'étude théorique de Rosner *et al.* (1991) montre l'influence de la forme d'un agrégat type « chaîne », qu'il compare à une forme sphéro-cylindrique (schéma sur la Figure 1.21), sur la vitesse de thermophorèse. Dans le cadre de ces travaux, Rosner *et al.* (1991) considèrent la réflexion des molécules à la surface de la particule comme diffuse ($\alpha_i = 1$). La Figure 1.21 compare la diffusivité thermophorétique de ce type d'agrégat à celle d'une sphère de même diamètre que le cylindre. Le nombre de particules primaires composant la chaîne d'agrégat est exprimé en fonction de la longueur L et du rayon R du cylindre. Comme il a été montré pour des chaînes d'agrégat dans le domaine continu (Figure 1.20), la diffusivité thermique d'un agrégat de type chaîne est supérieure à celle d'une particule sphérique de même diamètre que l'agrégat de forme sphéro-cylindrique si celui-ci est aligné avec le gradient de température.

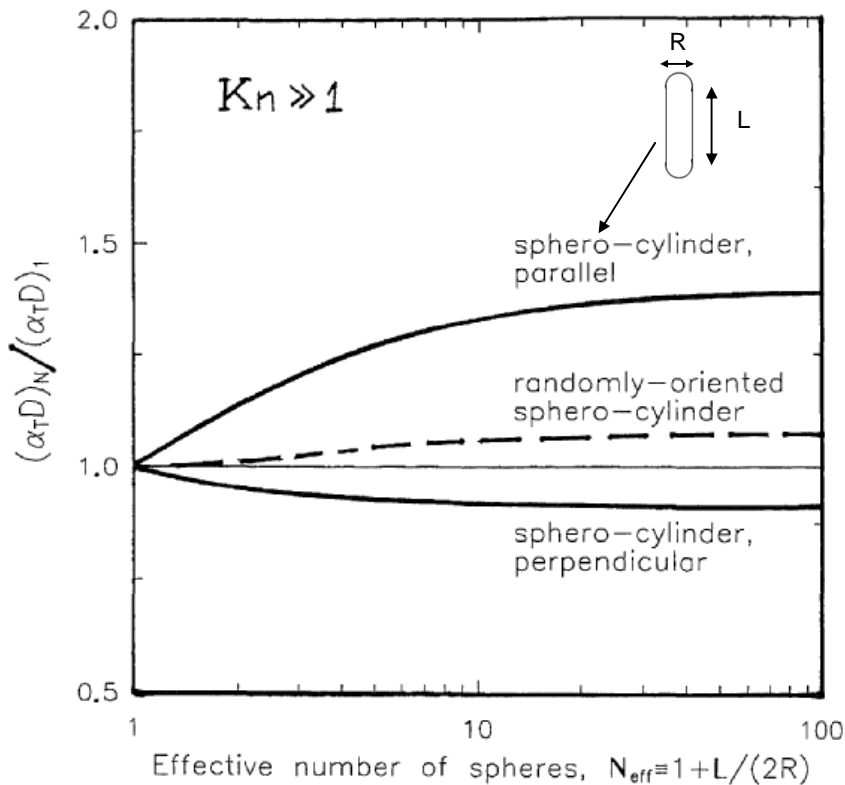


Figure 1.21 : Comparaison de la diffusivité thermique d'une particule sphéro-cylindrique par rapport à la diffusivité thermique d'une particule sphérique de même diamètre, en fonction du nombre de particules primaires exprimé en fonction de la longueur L et du rayon R du cylindre, Rosner *et al.* (1991)

Le travail de Rosner *et al.* (1991) fait suite aux études de Garcia-Ybarra et Rosner (1989). La Figure 1.22 compare la vitesse de thermophorèse d'une particule sphéro-cylindrique à celle d'une particule sphérique de même diamètre que le diamètre du cylindre. L'angle β est l'angle entre l'axe principal de la particule et le gradient de température : l'angle β vaut 0° lorsque la particule est alignée avec le gradient de température. La Figure 1.22 montre, d'une part, qu'une particule sphéro-cylindrique alignée au gradient de température a une vitesse de thermophorèse supérieure à celle d'une sphère et, d'autre part, que la vitesse thermophorétique du sphéro-cylindre diminue lorsque l'angle β augmente.

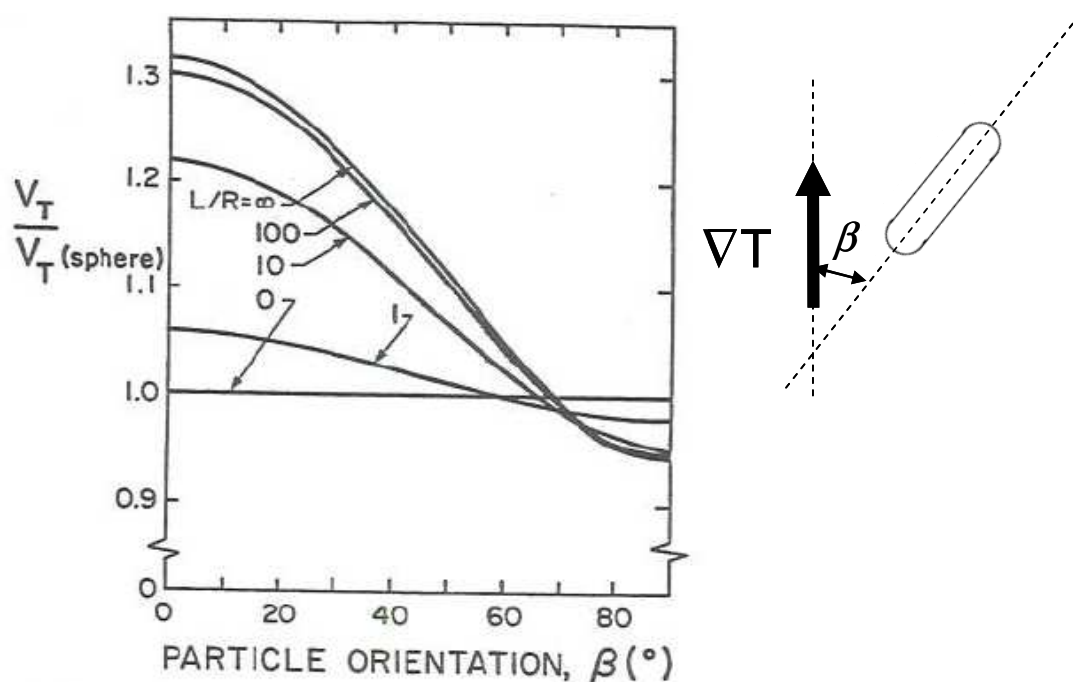


Figure 1.22 : Comparaison entre la vitesse de thermoporèse d'une particule sphéro-cylindrique et une particule sphérique de même diamètre que le diamètre du cylindre, en fonction de l'orientation de la particule, Garcia Ybarra et Rosner (1989)

De l'ensemble de ces études, il semble évident que la forme d'une particule non sphérique a une influence sur sa vitesse de thermophorèse. En effet, contrairement à une particule de forme sphérique, l'orientation d'une particule de forme plus complexe comme une chaîne d'agrégats ou encore un sphéro-cylindre a un impact non négligeable sur la vitesse de thermophorèse. De plus, la vitesse de thermophorèse de ces particules de morphologies complexes est, lorsque l'agrégat est aligné avec le gradient de température, supérieure à celle d'une particule sphérique de dimension inférieure, ce qui s'oppose à la théorie qui montre que la vitesse de thermophorèse diminue lorsque la taille des particules augmente. Au vu de ces résultats, on peut se poser la question de l'utilisation de diamètres équivalents pour caractériser l'agrégat ; ces diamètres, tels que définis actuellement, ne pourraient pas prendre en compte l'effet de l'orientation de l'agrégat par rapport au gradient de température.

1.11. Influence des particules primaires sur la vitesse de thermophorèse d'un agrégat

1.11.1. Travaux de Mackowski

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il est peu judicieux d'utiliser des diamètres équivalents classiques pour caractériser la thermophorèse d'un agrégat. Il se pose donc la question de savoir quel paramètre peut caractériser au mieux un agrégat et ainsi déterminer avec précision sa vitesse de thermophorèse.

Pour répondre à cette question, Mackowski (2006) a développé une méthode numérique afin d'étudier la thermophorèse d'agrégats de sphères. Pour ce faire, il utilise un algorithme capable de créer un agrégat composé de 2 à 3000 particules sphériques de diamètres identiques. La Figure 1.23 est un exemple d'agrégat formé par l'algorithme de Mackowski.

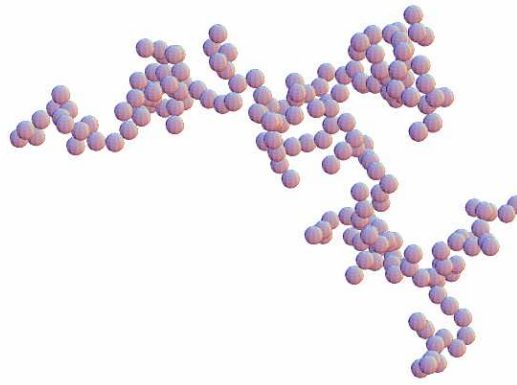


Figure 1.23 : Exemple d'un agrégat formé par l'algorithme de Mackowski (2006)

Dans son travail, Mackowski tente de déterminer l'influence d'une morphologie fractale sur l'hydrodynamisme et la vitesse de thermophorèse de ce type d'agrégat en régime moléculaire.

Pour le premier point, Mackowski (2006) étudie l'évolution du diamètre hydrodynamique de ses agrégats en fonction du nombre de particules primaires et ceci pour différentes dimensions fractales. Le rayon hydrodynamique est le rayon d'une sphère ayant la même force de traînée dans l'eau que l'agrégat. Le rayon hydrodynamique varie, dans l'étude, entre 0,01 μm et 1,3 μm pour des particules primaires comprises entre 0,01 μm et 0,03 μm . Sur la figure 1.24 nous pouvons constater que ce rayon augmente avec le nombre de particules primaires de l'agrégat ; cependant, celui-ci ne semble pas dépendre de la dimension fractale pour des valeurs comprises entre 1,7 et 2.

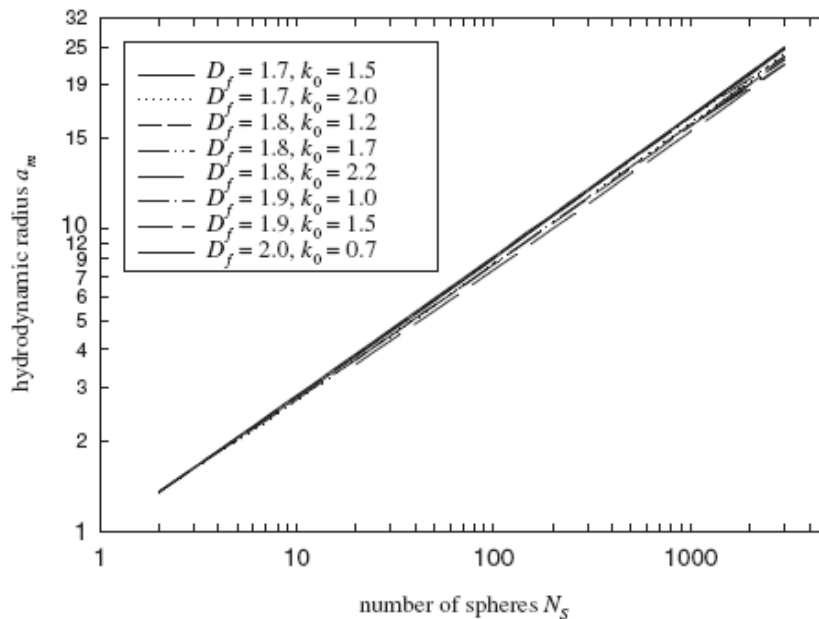


Figure 1.24 : Rayon hydrodynamique adimensionnel d'un agrégat en fonction du nombre de particules primaires pour différentes dimensions fractales, Mackowski (2006)

En reprenant la relation (1.40), nous avons vu que la vitesse de thermophorèse peut s'exprimer sous la forme :

$$\bar{V}_{\text{th}} = -K_{\text{th}} \frac{\eta_{\text{g}}}{\rho_{\text{g}} T_{\text{g}}} \bar{\nabla} T,$$

où K_{th} représente le coefficient de thermophorèse. La Figure 1.25 compare la vitesse de thermophorèse d'un agrégat, dans le domaine moléculaire, à la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire isolée en fonction du nombre de particules primaires composant l'agrégat. On peut constater, d'une part que la vitesse de thermophorèse d'un agrégat composé de particules

sphériques est plus élevé que celui d'une particule primaire isolée, d'autre part que cette vitesse de thermophorèse augmente avec le nombre de monomères.

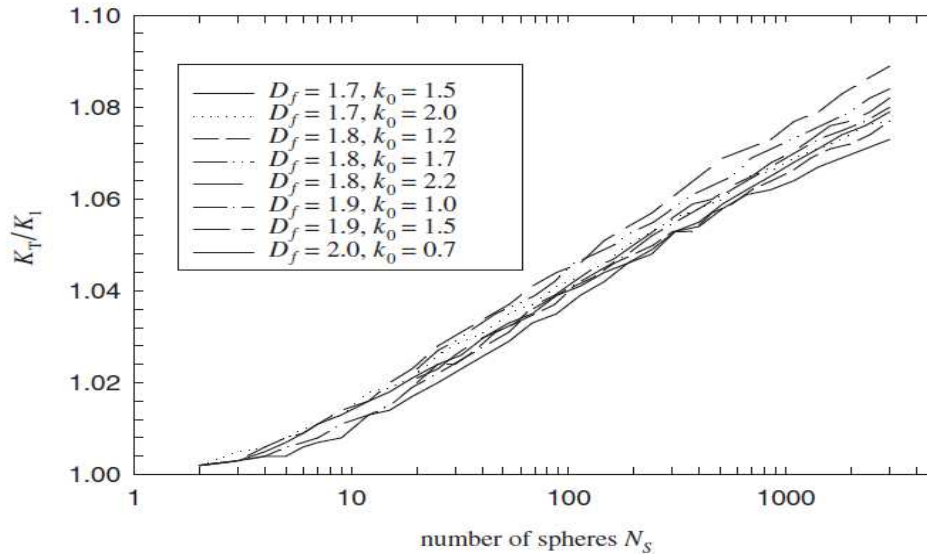


Figure 1.25 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'un agrégat et la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire isolée en fonction du nombre de particules primaires, pour différentes dimensions fractales, Mackowski (2006)

La différence entre la vitesse de thermophorèse d'un agrégat et celui d'un monomère est très faible (8 % d'écart entre un agrégat de 3000 particules primaires et une particule primaire isolée) et, comme pour le rayon hydrodynamique, le coefficient de thermophorèse d'un agrégat ne semble pas dépendre de sa dimension fractale ni de son préfacteur (2 % d'écart pour un agrégat composé de 3000 particules primaires). Cependant, l'écart entre la vitesse de thermophorèse d'un agrégat et celle d'une particule primaire isolée est croissant sur l'ensemble du domaine de Knudsen correspondant à des rayons hydrodynamiques compris entre 0,01 μm et 1,3 μm . L'étude de Mackowski (2006) montre donc que la vitesse de thermophorèse augmente avec la taille des agrégats sur l'ensemble du domaine de Knudsen, ce qui est contraire à la théorie appliquée au cas des particules sphériques.

1.11.2. Travaux de Suzuki *et al.* (2009)

Pour observer l'effet de la morphologie sur la vitesse de thermophorèse de particules non sphériques Toda *et al.* (1996) ont réalisé une étude expérimentale et ont observé des vitesses de thermophorèse supérieures à celles prédites par la théorie pour des particules d'oxyde de magnésium de 20 μm et de silice de 2,7 μm . Ono *et al.* (2002) poursuivent l'expérience en observant le comportement thermophorétique de particules de suies de flammes de toluène et de benzène sous microgravité et observent une vitesse de thermophorèse, pour des agrégats de taille micronique, ayant une valeur proche de celle de la théorie de Waldmann et Schmitt (1966).

Pour déterminer la vitesse de thermophorèse d'agrégat, Suzuki *et al.* (2009) utilisent le banc expérimental présenté sur la Figure 1.26. Le banc permet d'observer des agrégats entre deux plaques où est imposé un gradient de température variant entre 0 K/m et 30 000 K/m. Lors du passage des particules de carbone entre les deux plaques, une caméra CCD associée à un objectif microscopique permet de déterminer la taille et la vitesse de thermophorèse de l'agrégat considéré.

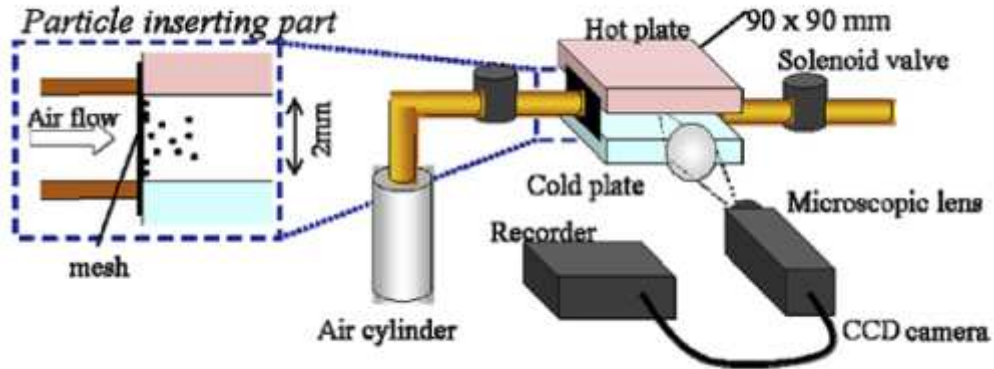


Figure 1.26 : Banc expérimental de détermination de la vitesse de thermophorèse de particules de suies (Suzuki *et al.*, 2009)

Suzuki et ses collaborateurs utilisent différents échantillons de carbone pour leurs expériences. Ceux-ci sont présentés dans le tableau 1.3 avec leurs caractéristiques, comme la taille des particules primaires, la masse volumique globale de l'échantillon (*bulk density*) qui représente la masse volumique d'un gâteau de particules et la masse volumique des matériaux utilisés (*true density*).

Tableau 1.3 : Propriétés des différents échantillons de carbone utilisés dans l'étude de Suzuki *et al.* (2009)

Properties of carbon black samples.

	Size of primary particle (nm)	Bulk density (g/cm ³)	True density (g/cm ³)	Dimensionless density (bulk density/true density)	<i>Kn</i> of primary particle	<i>Kn</i> of aggregated particles
#40	24	0.14	1.79	0.0783	2.8	7.7×10^{-4} – 6.8×10^{-3}
#44	24	0.18	1.81	0.0996	2.8	4.0×10^{-4} – 1.4×10^{-2}
#45	24	0.19	1.81	0.1048	2.8	4.5×10^{-4} – 1.4×10^{-2}
#30	30	0.13	1.81	0.0719	2.2	3.4×10^{-4} – 6.8×10^{-3}
#33	30	0.16	1.81	0.0884	2.2	4.0×10^{-4} – 6.8×10^{-3}

Dans un premier temps, les auteurs font varier le gradient de température entre 3 600 K/m et 31 700 K/m afin de voir son influence sur la vitesse de thermophorèse. La Figure 1.27 présente l'évolution de la vitesse de thermophorèse en fonction du gradient de température. Comme la théorie le prévoit, la vitesse thermophorétique des agrégats augmente avec le gradient de température. Sur la Figure 1.27, on peut voir que les particules de masse volumique globale (*bulk density* de 0,13 et 0,14 g/cm³) les plus faibles ont la vitesse de thermophorèse la plus élevée (points #30 et #40).

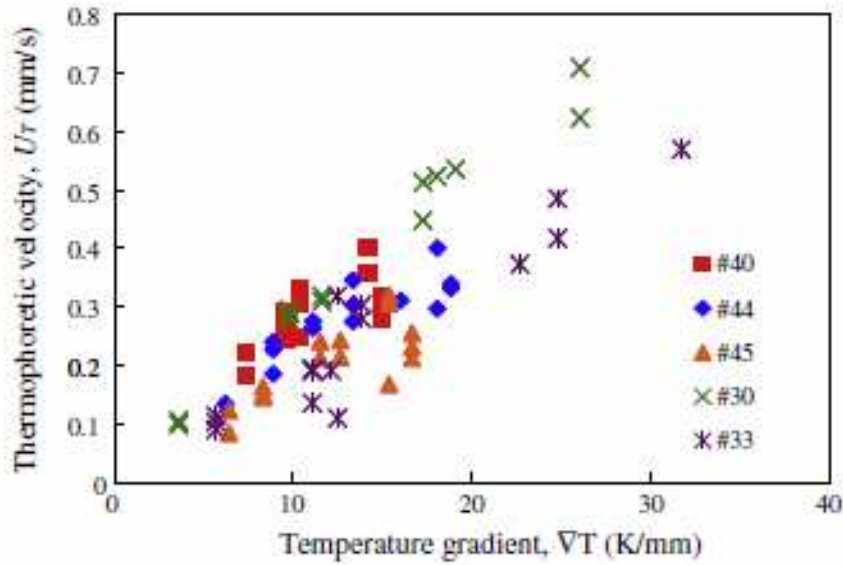


Figure 1.27 : Evolution de la vitesse de thermophorèse en fonction du gradient de température (Suzuki *et al.*, 2009)

La Figure 1.28 présente l'évolution de la vitesse de thermophorèse en fonction du paramètre $v_g \nabla T / T_g$. On y observe la même tendance que pour la Figure 1.27, la vitesse de thermophorèse augmentant avec le gradient de température. Pour les mêmes conditions expérimentales, les vitesses de thermophorèse les plus élevées sont obtenues pour les agrégats ayant la masse volumique adimensionnée la plus faible (points #30 et #40). La Figure 1.28 compare également les vitesses de thermophorèse obtenues expérimentalement avec celles déterminées par la relation de Waldmann (Eq. 1 sur la figure). Les vitesses expérimentales sont, pour les agrégats de faible masse volumique et de taille de monomères les plus petites, très proches de l'expression de Waldmann.

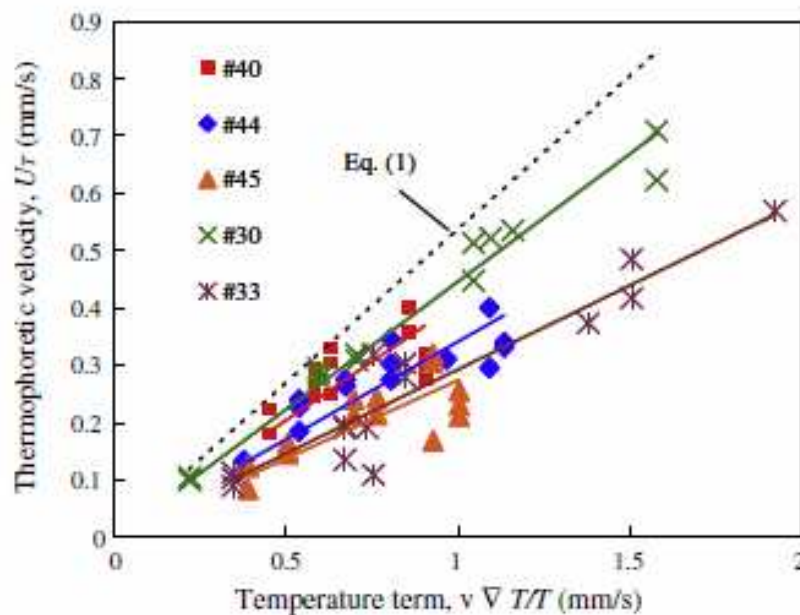


Figure 1.28 : Evolution de la vitesse de thermophorèse en fonction du paramètre $\frac{v_g \nabla T}{T_g}$ (Suzuki *et al.*, 2009)

La Figure 1.29 présente l'évolution de la vitesse de thermophorèse des agrégats décrits dans le tableau 1.3 en fonction de leurs tailles. La taille des agrégats est mesurée par le microscope et est définie en prenant pour diamètre de l'agrégat le diamètre de la sphère enveloppant l'agrégat. La Figure 1.29 présente aussi la vitesse de thermophorèse pour des particules sphériques (points noirs sur la figure) ainsi que les relations de Waldmann (Cf. 1.11), Derjaguin (Cf. 1.26) et Brock (Cf. 1.25). Les vitesses de thermophorèse des agrégats étudiés ici ne suivent pas la théorie. Contrairement aux particules sphériques, la vitesse de thermophorèse des agrégats augmente lorsque leur taille augmente.

D'après les résultats de Mackowski (2006) et ceux de Suzuki *et al.* (2009), la vitesse de thermophorèse d'un agrégat composé de particules primaires semble dépendre de la taille et du nombre des particules primaires. En effet, sur la Figure 1.29, la vitesse de thermophorèse augmente avec la taille des agrégats jusqu'à atteindre, dans le domaine intermédiaire et continu, la valeur de vitesse obtenue par des particules répondant à l'équation de Waldmann dans le domaine moléculaire, et s'écarte donc des relations de Derjaguin et de Brock. Sur la Figure 1.25, Mackowski montre que, dans le domaine moléculaire, la vitesse de thermophorèse d'un agrégat est proche de celui d'une particule primaire mais peut être supérieur de 10 %. Ainsi, la vitesse de thermophorèse obtenue pour des agrégats est très proche de celle des particules primaires les composant.

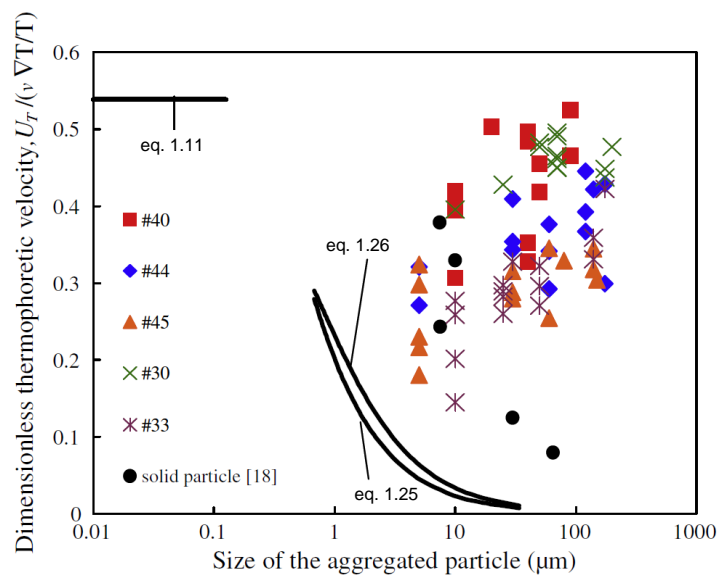


Figure 1.29 : Evolution de la vitesse de thermophorèse mesurée en fonction de la taille des agrégats (Suzuki *et al.*, 2009)

Les travaux de Mackowski (2006) et de Suzuki *et al.* (2009) montrent que la vitesse de thermophorèse des agrégats est sous estimée. En effet, nous obtenons des vitesses de thermophorèse pour des agrégats supérieurs à 100 μm égales à celles obtenues pour des particules primaires. Or la théorie précise que la vitesse thermophorétique diminue avec la taille des particules. La vitesse de thermophorèse d'agrégats semble donc dépendre de la taille des particules primaires, plus que de la taille de l'agrégat déterminée par un diamètre équivalent classique. Cependant, au vu des études présentées, il est impossible de connaître le réel impact de la taille des particules primaires. Dans les travaux de Suzuki *et al.* (2009), il est impossible de dissocier l'influence de la taille des monomères de celle de la masse volumique de l'agrégat, ni de faire une liaison entre la vitesse de thermophorèse obtenue et la morphologie fractale des agrégats mesurés. Comme les résultats les plus significatifs sont obtenus dans les domaines intermédiaire et continu (Suzuki *et al.*, 2009), il semble intéressant, pour poursuivre les travaux, de chercher à relier une vitesse d'agrégat à la taille des particules primaires le composant, sa masse volumique et ses paramètres de morphologie fractale (D_f et k_f).

1.12. Orientation et déviation des agrégats soumis à un gradient de température

Mackowski (1990) a utilisé une nouvelle méthode pour analyser le comportement thermophorétique d'un agrégat composé de deux sphères ayant une haute conductivité thermique, dans le régime proche continu. La Figure 1.30 représente l'agrégat composé de deux sphères dans le système de coordonnées utilisé dans l'étude. Les dimensions a_1 et a_2 représentent les rayons des particules primaires.

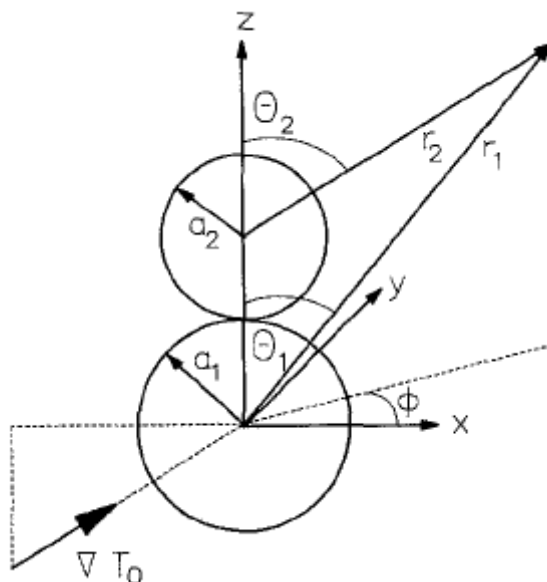


Figure 1.30 : Représentation d'un agrégat composé de deux sphères soumis à un gradient de température (Mackowski, 1990)

La Figure 1.31 présente l'évolution de la diffusivité thermophorétique d'un agrégat en fonction du rapport des diamètres des monomères. Dans son étude, Mackowski trouve que la vitesse de thermophorèse d'un agrégat composé de deux particules primaires de même diamètre diffère de 20 % entre la composante parallèle et la composante perpendiculaire au gradient de température. Garcia-Ybarra et Rosner (1989) trouvent une dérive de 12° d'une particule sphéro-cylindrique par rapport au gradient de température. Ceci implique qu'un agrégat de forme non sphérique peut avoir un déplacement non parallèle au gradient de température. Par exemple, un agrégat de deux sphères symétriques avec un nombre de Knudsen égal à 0,1 et un rapport k_p/k_g égal à 0,05 peut avoir une trajectoire déviée de $6,4^\circ$ par rapport au gradient de température.

Cependant, dans l'étude de Mackowski (1990), cet effet semble surtout concerné les agrégats composés de deux monomères de mêmes diamètres et celui-ci semble négligeable lorsque les diamètres des particules primaires sont différents. Dans ce cas là, Mackowski (1990) trouve que la force de thermophorèse agissant sur un agrégat asymétrique résulte d'un couple thermophorétique qui tend à provoquer une rotation de l'agrégat. Ce couple thermophorétique tend à aligner l'agrégat par rapport au gradient de température de telle manière que la particule primaire la plus large soit orientée vers le côté le plus chaud du gradient de température. Pour Mackowski (1990), la force provoquant cette orientation thermophorétique est, dans le cadre de fort gradient de température (10^5 K/m), nettement supérieure à la force résultant du mouvement brownien.

L'origine de cette orientation de l'agrégat soumis à un gradient de température reste cependant très peu discutée dans la littérature et aucune expérience ne traite de ce problème. Cependant, au vu de la dispersion en taille des particules primaires et en masse de l'agrégat, on peut se demander quel réel impact ce couple thermophorétique a sur la vitesse de thermophorèse.

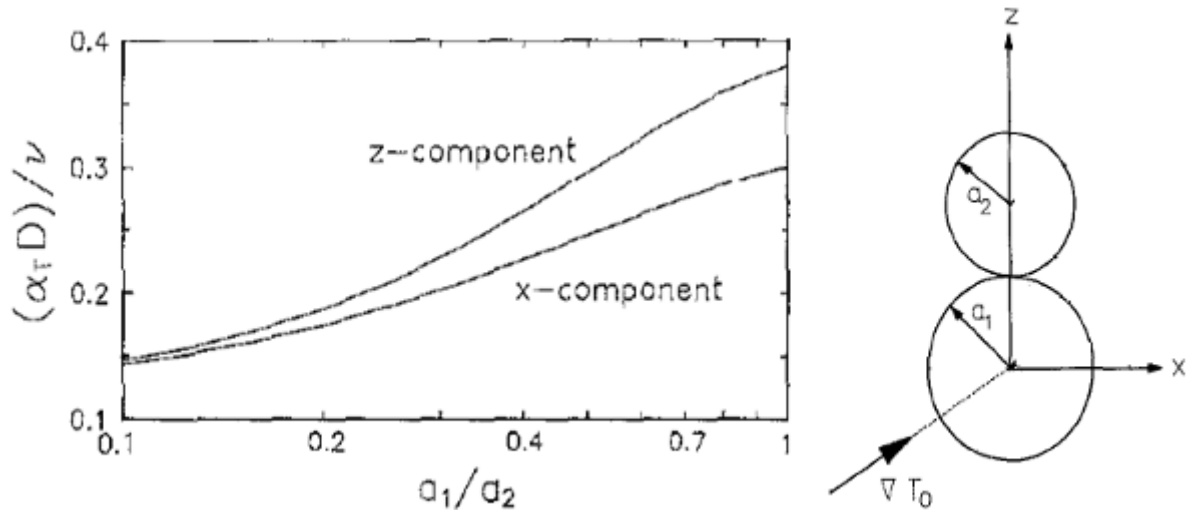


Figure 1.31 : Evolution de la diffusivité thermophorétique en fonction du rapport des diamètres des particules primaires (Mackowski, 1990)

Cette étude bibliographique a mis en évidence que des particules non sphériques telles que les agrégats ne peuvent pas être considérées comme des particules sphériques, au risque de sous estimer la vitesse de thermophorèse et donc le dépôt de ce type de particules par thermophorèse. Nous avons constaté, d'une part que l'orientation par rapport au gradient de température d'une particule non sphérique a une influence sur sa vitesse de thermophorèse, d'autre part Mackowski (1990) a montré qu'un agrégat tend à s'orienter parallèlement à ce même gradient de température, ce qui augmente sa vitesse de thermophorèse. Il existe peu de travaux théoriques reliant le comportement thermophorétique des agrégats à leurs morphologies fractales. Par exemple, Mackowski (2006) montre dans sa simulation Monte-Carlo une augmentation de la vitesse de thermophorèse d'un agrégat lorsque le nombre de particules primaires augmente. Au contraire, Rosner et Khalil (2000) indiquent que le dépôt par thermophorèse d'agrégats reste élevé et constant sur l'ensemble des nombres de Knudsen. La Figure 1.32 résume les phénomènes exposés précédemment, notamment l'orientation que prend un agrégat lorsqu'il est soumis à un gradient de température.

Les rares travaux expérimentaux sur la détermination du coefficient ou de la vitesse de thermophorèse d'agrégats ne permettent pas de valider les théories exposées dans ce chapitre. Ainsi, l'étude expérimental de Suzuki *et al.* (2009) montre une augmentation de la vitesse de thermophorèse d'agrégats en fonction de leur taille pour des particules supérieures à $1\mu\text{m}$ et sans une étude de la morphologie fractale des agrégats. Pour le régime intermédiaire, Messerer *et al.* (2003) montrent lors d'une étude de dépôt par thermophorèse d'agrégat que le coefficient de thermophorèse augmente légèrement avec la taille des agrégats (diamètre de mobilité électrique) et est très proche de la valeur du coefficient de Waldmann. Les auteurs en concluent que le coefficient de thermophorèse est indépendant de la taille des agrégats mais sans faire d'étude morphologique des agrégats. Par exemple, les auteurs ne donnent pas d'informations sur le nombre de particules primaires, ni d'élément direct permettant de calculer N_{pp} . Nous reviendrons sur ces travaux dans le chapitre 4 en réalisant des mesures spécifiques avec le même type d'agrégats afin de déduire N_{pp} .

Les faibles écarts observés par les études théoriques sur l'évolution de la vitesse de thermophorèse des agrégats et le manque de résultats expérimentaux permettant de valider ces théories d'une part ou de relier la morphologie des agrégats à leur comportement thermophorétique d'autre part, justifie de développer un dispositif expérimental avec une haute résolution pour l'étude du comportement thermophorétique des agrégats de suies de combustion.

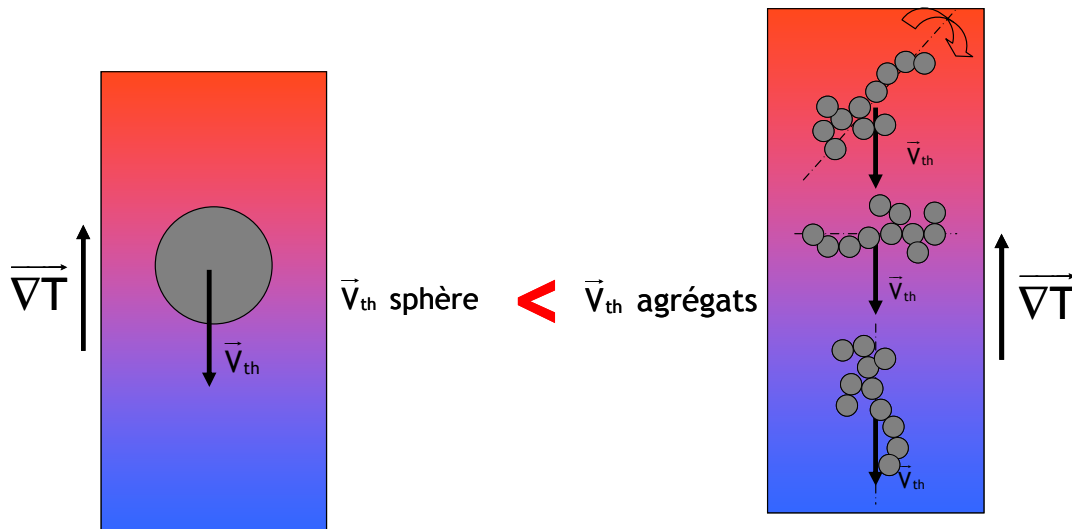


Figure 1.32 : Comparaison entre la vitesse de thermophorèse d'une particule sphérique et d'une particule en forme d'agrégat

1.13. Démarche expérimentale pour l'étude du mécanisme de thermophorèse

Les techniques de mesure du mécanisme de thermophorèse peuvent être divisées en trois types :

- la mesure de la force de thermophorèse,
- la mesure de la vitesse de thermophorèse,
- la mesure de l'efficacité de dépôt.

1.13.1. Détermination de la force de thermophorèse

Il existe deux méthodes pour déterminer une force de thermophorèse. La première consiste en l'utilisation d'une balance de Millikan modifiée. La Figure 1.33 présente le principe de cette expérience. Une particule chargée isolée est mise en lévitation entre deux électrodes parallèles par application d'une différence de potentiel entre celles-ci. La plaque du haut est chauffée tandis que la plaque du bas est refroidie afin d'imposer un gradient de température vertical pour supprimer les effets de convection. La taille de la particule est déterminée à partir de sa vitesse de sédimentation qui est mesurée avant que le gradient de température ne soit imposé. Cette configuration a été adoptée par de nombreuses recherches dont celles de Jacobsen et Brock (1965), Schadt et Cadle (1961), ou Oostra *et al.* (1998).

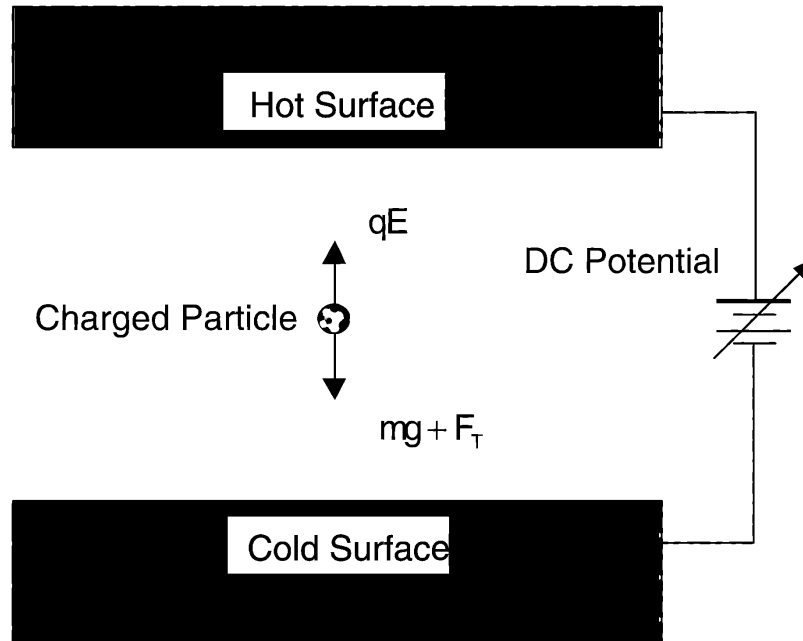


Figure 1.33 : Mesure des effets de la thermophorèse sur une particule isolée avec une cellule de Millikan modifiée, Zheng (2002)

Le principal problème rencontré dans les expériences utilisant la cellule de Millikan est que la particule n'est pas stable horizontalement. Pour résoudre ce problème, Li et Davis (1995) utilisent une balance électrodynamique (EDB) dans leur mesure de la force de thermophorèse. Comme dans une cellule de Millikan classique, une différence de potentiel est appliquée entre deux électrodes afin de mettre en lévitation une particule chargée. En complément, un champ alternatif est mis en place afin de stabiliser la particule verticalement et horizontalement.

La Figure 1.34 présente la balance électrodynamique utilisée par Li et Davis (1995), qui ont monté un système EDB entre deux plaques reliées à des échangeurs de chaleur afin de contrôler le gradient de température. Le problème de cet appareil est que, bien que la particule soit stable horizontalement, il n'existe aucun moyen pour neutraliser toutes les forces horizontales s'exerçant sur la particule. De telles forces sont fréquemment rencontrées comme la force due à un mauvais alignement des électrodes, un écoulement de gaz dû à la convection ou encore la composante horizontale de la force de thermophorèse d'une particule non sphérique. Si ces forces horizontales ne sont pas compensées, il risque d'y avoir une imprécision sur la mesure de la taille et de la vitesse de thermophorèse de la particule.

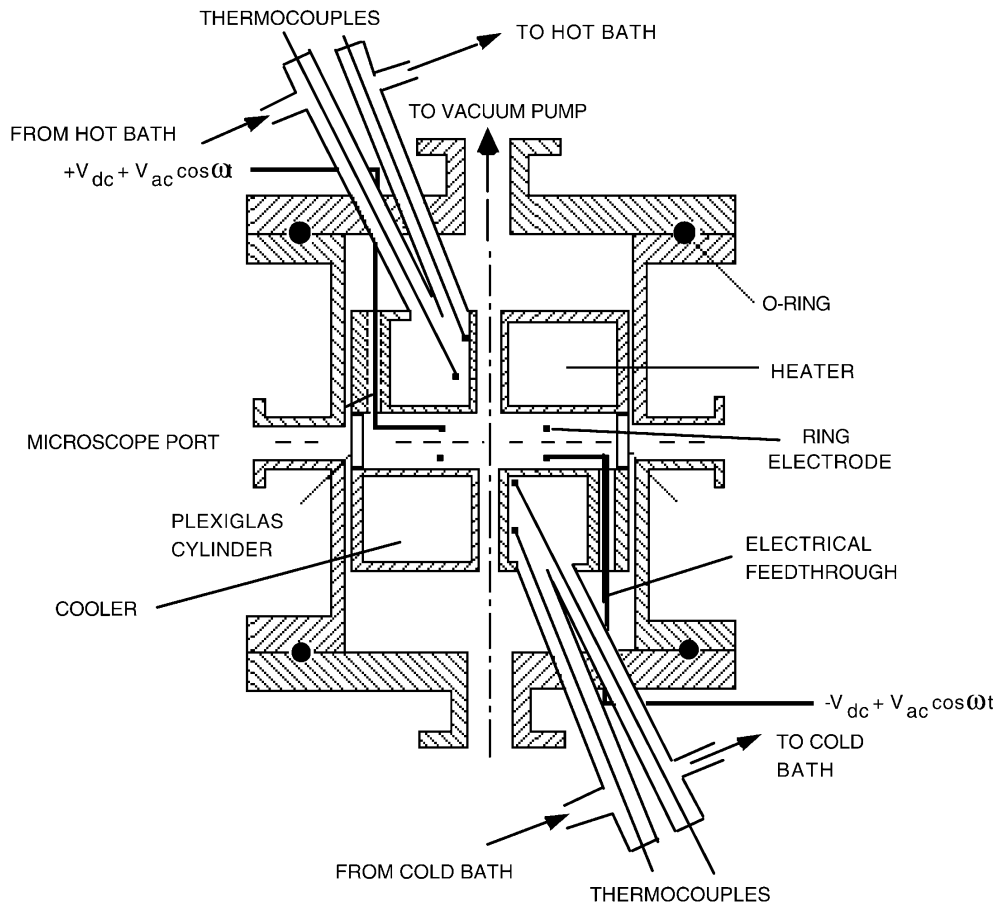


Figure 1.34 : Balance électrodynamique utilisée par Li et Davis (1995) pour la mesure de l'effet de la thermophorèse sur une particule isolée

Pour résoudre ce problème, Zheng et Davis (2001) ont développé une nouvelle balance électrodynamique capable de compenser et de mesurer les forces agissant sur une particule dans les trois dimensions. Ce nouveau système permet une mesure plus fiable et précise de la force de thermophorèse agissant sur une particule, notamment sur une particule non sphérique dont la force de thermophorèse dépend de l'orientation de la particule.

La Figure 1.35 présente la balance électrodynamique utilisée par Zheng et Davis (2001) pour la mesure de la force de thermophorèse. Un double anneau servant d'électrode placé au centre de la chambre d'étude permet de stabiliser la particule sur trois dimensions. Un accès latéral permet la mesure de la taille de la particule à l'aide d'une photodiode. Pour les particules non sphériques, la taille est mesurée par analyse de l'oscillation de la trajectoire de la particule. La forme de la particule et son orientation sont obtenues par analyse des images enregistrées. Un gradient de température avoisinant 2 200 K/m a été mis en place dans cette étude.

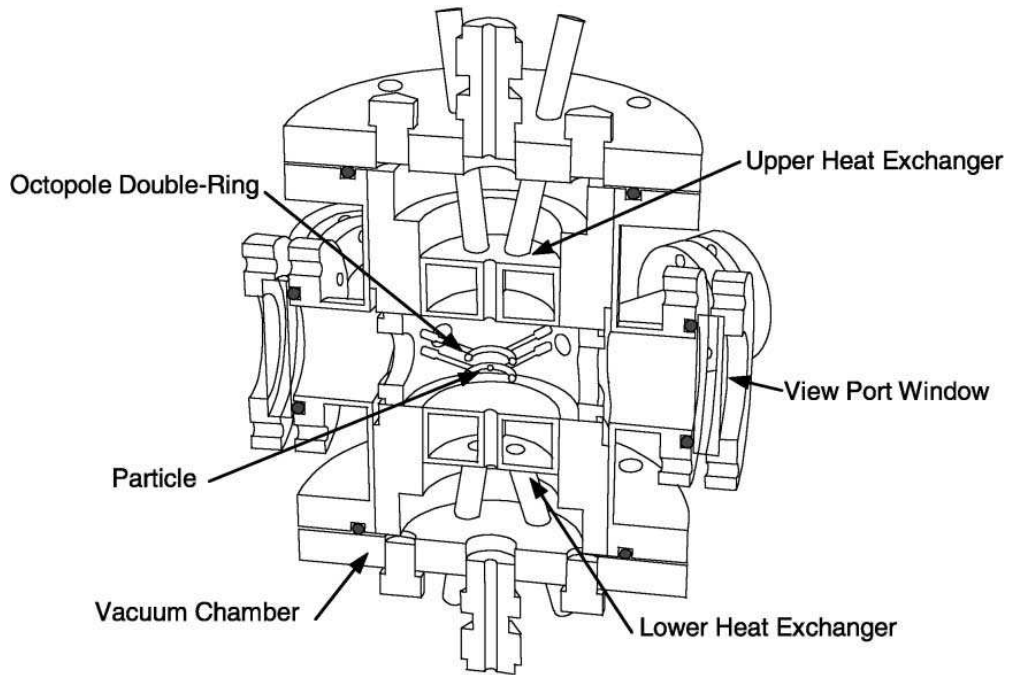


Figure 1.35 : Balance électrodynamique pour la mesure de la vitesse de thermophorèse, Zheng et Davis (2001)

1.13.2. Détermination de la vitesse de thermophorèse

La détermination de la vitesse de thermophorèse est basée sur la mesure de déviation de trajectoire d'une particule soumise à un gradient de température dans un écoulement. Prodi *et al.* (1979) et plus récemment Santachiara *et al.* (2002) ont développé un système avec un gradient de température mieux maîtrisé. Ce type de système de mesure consiste en ce qu'un aérosol polydispersé soit injecté dans un écoulement laminaire perpendiculaire au gradient de température. Le banc d'étude de la vitesse de thermophorèse utilisé par Santachiara *et al.* (2002) est présenté sur la Figure 1.36. Le conduit horizontal est limité par deux plaques horizontales de 85 cm de long et 12 cm de large. La hauteur entre les plaques est de 4,5 mm. Les parois latérales sont constituées par des parois optiques pour la visualisation de la trajectoire des particules. La vitesse de thermophorèse des particules est déterminée par l'observation du déplacement de la particule dans le champ de température ou en mesurant le dépôt en fonction de la distance. Les résultats de ces mesures sont difficiles à interpréter en raison des effets de convection et de la présence de plusieurs tailles de particules (polydispersées), ainsi que de l'incertitude sur la lecture de la trajectoire.

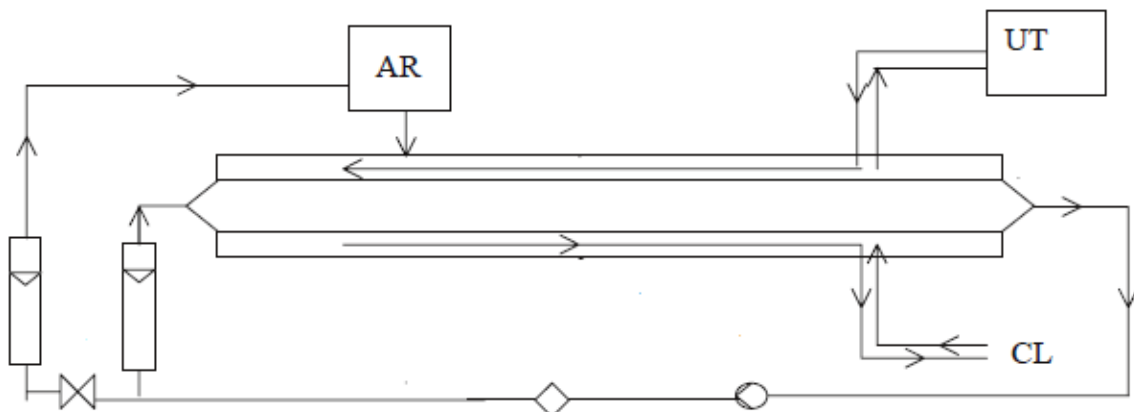


Figure 1.36 : Banc expérimentale de mesure de la vitesse de thermophorèse de particules avec UT le fluide chaud, CL le fluide froid et AR le réservoir d'aérosols ($2 < Kn < 10$), Santachiara *et al.* (2002).

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

Quelques expériences récentes de Toda *et al.* (1996), Oostra *et al.* (1998), Prodi *et al.* (2006, 2007) ou encore Suzuki *et al.* (2009) ont été menées sous microgravité. L'utilisation de la microgravité permet de neutraliser les effets de convection et de sédimentation, ce qui apporte une meilleure précision sur la mesure de la vitesse de thermophorèse. La Figure 1.37 présente les résultats obtenus par Prodi *et al.* (2007) lors d'essais en tour de chute, en confrontation aux résultats obtenus avec les modèles de Talbot, Beresnev et Yamamoto, pour un rapport des conductivités thermiques azote/paraffine égal à 0,049. Les résultats illustrent bien les difficultés des expérimentations conduites en conditions de microgravité, imposant à la fois une limitation sur le nombre d'expérimentations possibles, et une incertitude importante sur les mesures, liée à la faible durée de chaque expérimentation (environ 4 s).

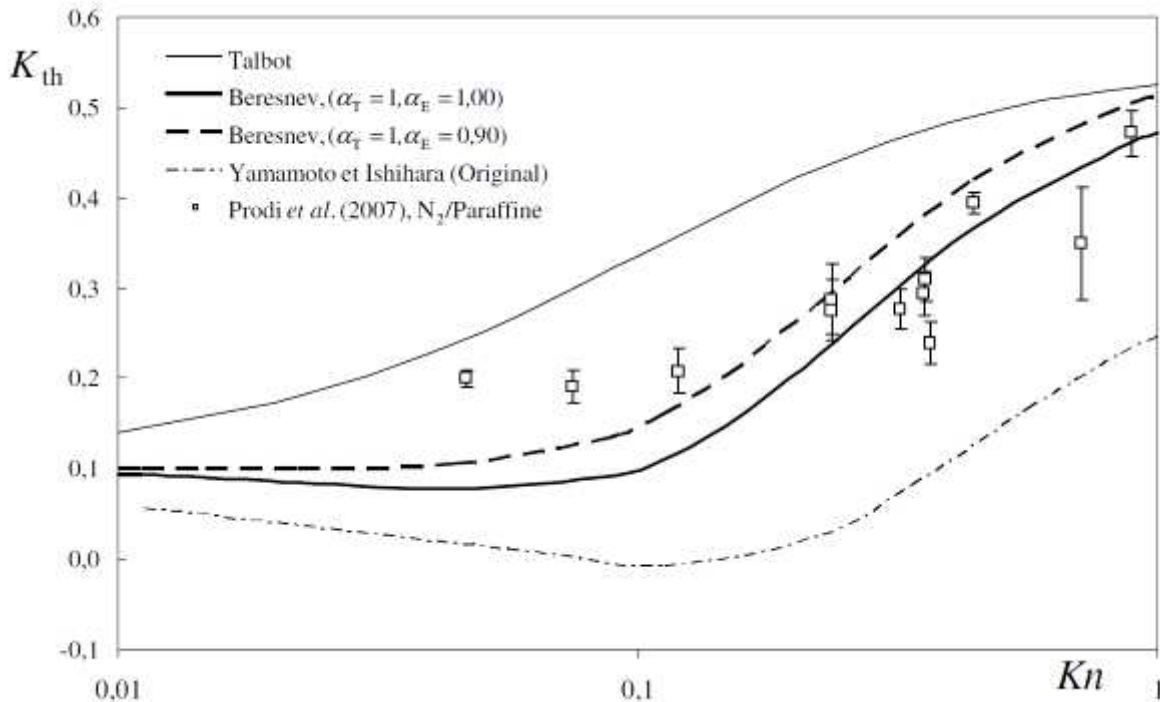


Figure 1.37 : Coefficient de thermophorèse mesurés par Prodi *et al.* (2007) en comparaison aux modèles de la littérature (Sagot, 2010)

1.13.3. Détermination de l'efficacité de dépôt

Dans ce type d'étude, on détermine le coefficient de thermophorèse par l'étude de l'efficacité de dépôt d'un aérosol chaud dans un conduit froid. Le dépôt sur la paroi froide est déterminé par la mesure de la concentration de l'aérosol en entrée et sortie du conduit. Cette efficacité de dépôt déterminée par ailleurs avec un modèle de dépôt thermophorétique permet le calcul du coefficient de thermophorèse.

Cependant le dépôt par thermophorèse dans ce type de conduit est très faible (moins de 10 %) et ceci pour un écoulement laminaire (Montassier *et al.*, 1990, Stratmann *et al.*, 1994) ou turbulent (Nishio *et al.*, 1974). Ce faible dépôt est la conséquence d'un gradient de température non maîtrisé dans le conduit et donne lieu à une forte dispersion des résultats expérimentaux.

Pour augmenter le rendement, on peut soit augmenter la différence de température entre le gaz et la paroi, ce qui élève l'efficacité de dépôt à 30-40 % (Munoz-Bueno, 2005), soit augmenter la longueur de la surface de dépôt. Mais le gradient de température ne doit pas être trop important afin de ne pas changer les propriétés physiques du gaz et de la particule entre l'entrée et la sortie du conduit et faire ainsi une mauvaise interprétation du coefficient de thermophorèse. De plus le refroidissement progressif de l'aérosol par la paroi froide entraîne une limitation du rendement de dépôt.

Pour réaliser une augmentation significative de l'efficacité de dépôt par effet thermophorétique, il faut augmenter la longueur de la zone de dépôt et maintenir l'écart de température entre l'aérosol et cette surface froide de dépôt. Pour résoudre ce problème, Sagot *et al.* (2009) ont développé un nouveau dispositif permettant de mesurer le coefficient de thermophorèse de particules en régime transitoire. Ce dispositif est présenté sur la Figure 1.38. Il consiste en un conduit horizontal de trois tubes concentriques. Dans l'espace annulaire extérieur circule un fluide chaud tandis que dans le tube intérieur circule un fluide froid. L'aérosol circule dans l'espace annulaire intermédiaire dans lequel un gradient de température stable est imposé. Ce système permet d'avoir une efficacité de dépôt de 30 % sans perturber les propriétés physiques du gaz et de la particule.

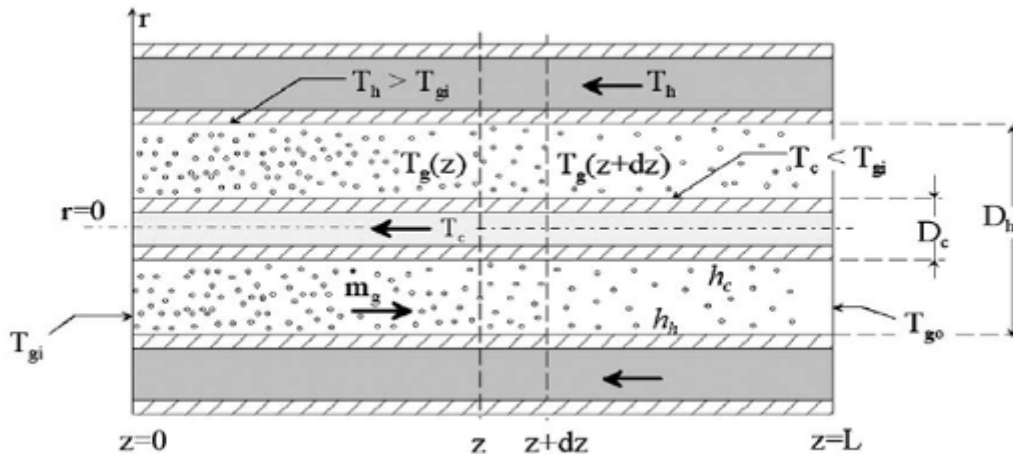


Figure 1.38 : Configuration du banc expérimental annulaire de Sagot *et al.* (2009)

La Figure 1.39 compare les résultats expérimentaux de Sagot *et al.* (2009) et les modèles existant dans la littérature. Ces résultats montrent un très bon accord entre les coefficients de thermophorèse de Sagot *et al.* (2009) et le modèle théorique de Beresnev et Chernyak (1995).

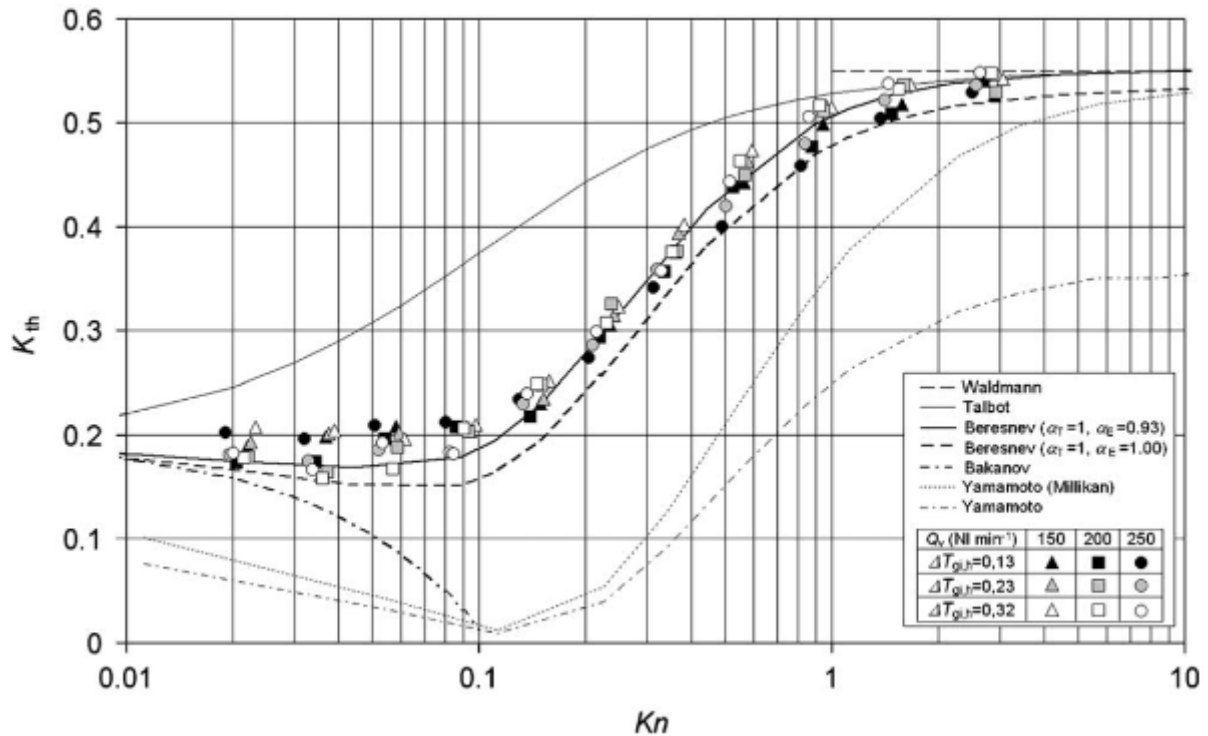


Figure 1.39 : Comparaison entre les résultats expérimentaux de Sagot *et al.* (2009) et les modèles existant dans la littérature (Sagot *et al.* 2009)

Des différentes méthodes de détermination du coefficient de thermophorèse, la méthode proposée par Sagot *et al.* (2009) semble la plus fiable. Les méthodes de lévitation électrique et d'utilisation de cellules de Millikan modifiées semblent compliquées à mettre en œuvre, notamment pour l'étude des particules non sphériques, alors que la méthode expérimentale de détermination de la vitesse de thermophorèse de Santachiara *et al.* (2002) présentent de grandes incertitudes liées à la lecture des résultats. Cependant, pour déterminer expérimentalement une valeur du coefficient de thermophorèse pour une valeur donnée du nombre de Knudsen, à partir de la mesure du rendement de dépôt thermophorétique, il est nécessaire de disposer d'un modèle liant le rendement et le coefficient de thermophorèse, en fonction des paramètres de l'écoulement.

Afin de s'affranchir de cette dernière condition, on propose de développer un dispositif original permettant d'obtenir directement et avec une forte résolution la vitesse de thermophorèse de particules sphériques ou non sphériques.

1.14. Conclusion

Cette étude bibliographique a d'abord permis de faire une synthèse des connaissances et relations disponibles dans la littérature pour exprimer le phénomène de thermophorèse pour des particules sphériques. Nous avons exposé les différences à prendre en considération pour l'expression de la vitesse de thermophorèse entre le domaine moléculaire et le domaine continu. On a pu constater que l'interaction entre les molécules du gaz et la surface de la particule, définie par les facteurs d'accommodation, caractérise l'expression de la vitesse de thermophorèse. On pu également observer que la vitesse de thermophorèse dépend fortement du rapport des conductivités thermique du gaz et de la particule, notamment lorsque la taille des particules augmente.

Nous avons mis en évidence que des particules non sphériques telles que les agrégats ne peuvent pas être considérées comme des particules sphériques, au risque de sous estimer la vitesse de thermophorèse et donc le dépôt de ce type de particules par thermophorèse. Nous avons constaté, d'une part que l'orientation par rapport au gradient de température d'une particule non sphérique a une influence sur sa vitesse de thermophorèse et, d'autre part, qu'un agrégat tend à s'orienter parallèlement à ce même gradient de température, ce qui augmente sa vitesse de

thermophorèse (Mackowski, 1990). Il existe peu de travaux théoriques reliant le comportement thermophorétique des agrégats à leurs morphologies fractales. Par exemple, Mackowski (2006) montre dans sa simulation Monte-Carlo une augmentation de la vitesse de thermophorèse d'un agrégat lorsque le nombre de particules primaires augmente. Au contraire, Rosner et Khalil (2000) et Messerer et al. (2003) indiquent que le dépôt par thermophorèse d'agrégats reste élevé et constant sur l'ensemble des nombres de Knudsen.

Les faibles écarts observés par les études théoriques sur l'évolution de la vitesse de thermophorèse des agrégats et le manque de résultats expérimentaux permettant de valider ces théories justifie de développer un dispositif expérimental avec une haute résolution pour l'étude du comportement thermophorétique des agrégats de suies de combustion. Le chapitre qui suit propose une description de la mise en œuvre d'un dispositif de ce type : le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire.

2. CONCEPTION DU SPECTROMETRE THERMOPHORETIQUE CIRCULAIRE

Dans ce chapitre, nous présentons le développement d'un dispositif original mettant en œuvre une configuration d'écoulement radial entre deux disques parallèles et concentriques, avec le disque supérieur chauffé et le disque inférieur refroidi, pour la mesure de la vitesse de thermophorèse.

Nous allons présenter, dans un premier temps, les différentes étapes de la conception de ce dispositif portant sur le choix des matériaux et la géométrie de l'appareil.

Nous présenterons ensuite la fonction de transfert du Spectromètre Thermophorétique Circulaire (SMTC) qui permet d'obtenir directement et avec une bonne résolution la vitesse de thermophorèse moyenne des particules sélectionnées par le dispositif.

Pour finir, nous exposerons une simulation thermo-hydraulique de ce nouveau dispositif qui nous a permis de vérifier numériquement la bonne uniformité des conditions d'écoulement entre les deux disques du dispositifs et la bonne homogénéité des températures de surface des disques chaud et froid.

2.1. Origine du SMTC : le SMEC

Le dispositif expérimental mis en œuvre pour cette étude est basé sur une configuration d'écoulement radial horizontal inspirée du Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire (SMEC) développé par Pourprix (1989, 1997). Le SMEC est un analyseur de mobilité électrique qui combine des effets aéraulique et électrique afin de sélectionner les particules en fonction de leur mobilité électrique Z (relation 1.45). Le SMEC est un appareil de symétrie cylindrique, composé de deux plaques planes métalliques circulaires et parallèles séparés par une distance h . Une des deux plaques est portée à un certain potentiel électrique U et l'autre est mise à la masse, créant ainsi un champ électrique uniforme \vec{E} . Un flux d'air propre et sec de débit Q_f est injecté par la périphérie de l'appareil et en est évacué par le centre du disque supérieur. Une fente circulaire de rayon a , découpée sur la plaque supérieure de l'analyseur, permet d'injecter un aérosol avec un débit Q_a . Cet aérosol est sélectionné dans la zone interplaque par combinaison de deux forces : d'une part une force de viscosité due aux flux aérauliques, et d'autre part par une force électrique due au champ électrique régnant entre les deux plaques. En ne considérant que ces deux forces, on sélectionne les particules en fonction de leur mobilité électrique Z .

On présente schématiquement sur la figure 2.1 le SMEC, modèle à dépôt, développé par Pourprix (1989). Cette version du SMEC permet d'effectuer des dépôts contrôlés sur des disques conducteurs, généralement en silicium. Dans ce système, l'aérosol chargé, une fois sectionnée dans la zone interplaque, se dépose sur la plaque inférieure sur une couronne dont le rayon R_z est fonction de la mobilité électrique de l'aérosol.

Ainsi, en récupérant cette plaque en silicium et en analysant les dépôts par microscopie optique, il est possible de remonter à la granulométrie de l'aérosol.

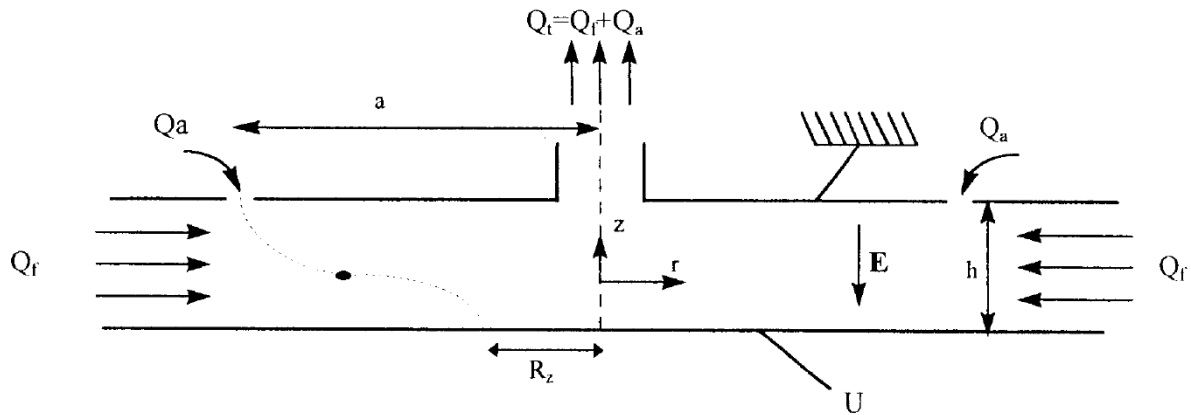


Figure 2.1 : Le SMEC à dépôt (Mesbah, 1993).

Dans une deuxième version, le SMEC devient différentiel et permet de sélectionner les particules grâce à leur mobilité électrique et surtout, de les extraire afin de pouvoir les injecter dans un compteur de noyaux de condensation (Mesbah, 1993). Dans cet appareil, les particules sélectionnées sont récupérées au niveau de la plaque inférieure par un orifice d'extraction qui, suivant la version de l'appareil, peut avoir deux formes différentes : soit une couronne de trous, de rayon b , située sur la plaque inférieure du SMEC (figure 2.2), soit un trou unique placé au centre de l'appareil (figure 2.3).

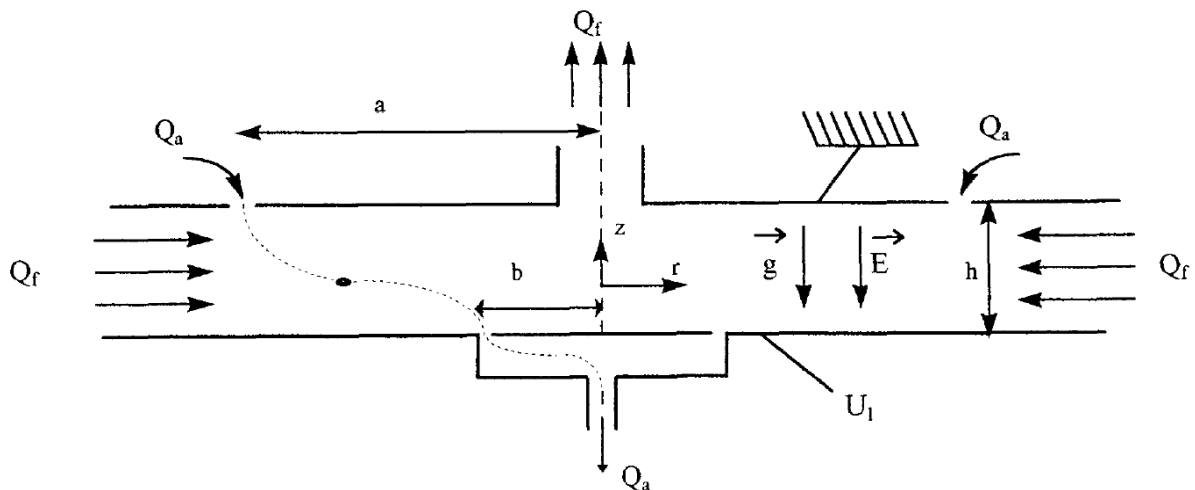


Figure 2.2 : Le SMEC différentiel à couronne de trous ((Le Bronec, 1998).

Les dimensions des différentes versions du SMEC sont les suivantes :

- l'épaisseur entre les deux disques h est de 4 mm,
- le rayon de la fente d'injection a est de 65 mm,
- le rayon de la fente d'extraction b est variable ($b = 0$ pour un trou central).

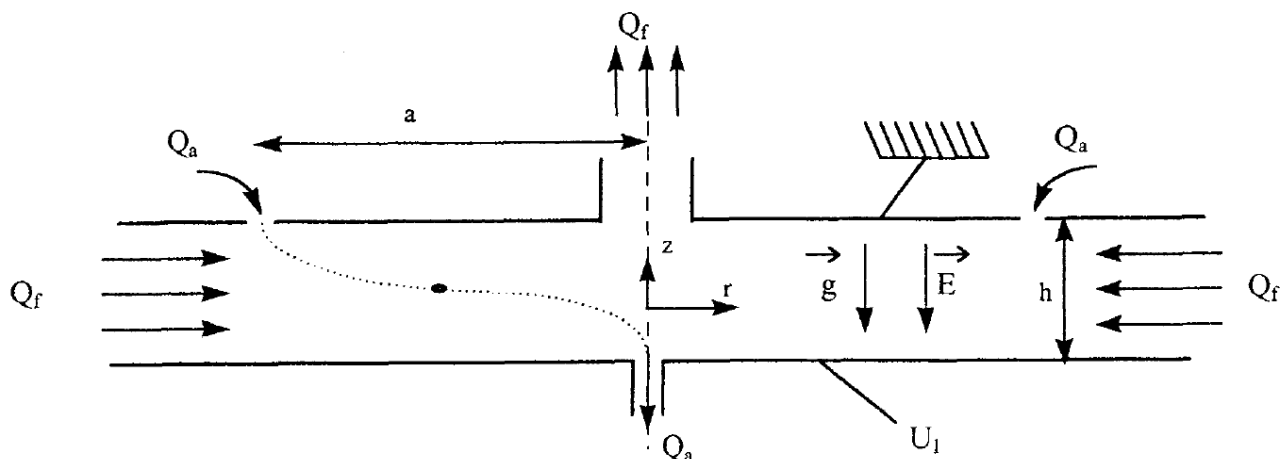


Figure 2.3 : Le SMEC différentiel à trou central (Le Bronec, 1998).

Pour développer le Spectromètre Thermophorétique Circulaire, nous sommes parti de la version du SMEC différentiel à trou central (figure 2.3). Le choix de cette géométrie pour développer un nouveau dispositif pour l'étude de la vitesse de thermophorèse repose sur :

- les études précédentes montrant une maîtrise du système pour l'étude de la mobilité électrique des particules,
- l'écoulement entre les deux plaques est maîtrisé et a fait l'objet de nombreux travaux, l'écoulement radial utilisé dans le SMTC présente l'avantage d'éviter les effets de bords rencontrés dans les dispositifs de type canal rectangulaire,
- une géométrie plane permettant une maîtrise fiable d'un gradient de température constant ce qui n'est pas le cas dans des dispositifs de type canal annulaire.

2.2. Conception du Spectromètre thermophorétique Circulaire (SMTC)

La géométrie du Spectromètre Thermophorétique Circulaire (SMTC) est inspirée de la géométrie du SMEC différentiel à trou central. Le schéma de principe du SMTC est représenté sur la figure 2.4. Le SMTC est composé de deux plaques planes métalliques circulaires et parallèles séparées par une distance h . La plaque supérieure du SMTC est chauffée à une température T_p tandis que la plaque inférieure est refroidie à une température T_f . La différence de température entre les deux plaques crée un gradient de température $\overline{\nabla T}$. Comme pour le SMEC, un débit d'air propre et sec Q_c est injecté par la périphérie du dispositif et en est évacué par le centre du disque supérieur à un débit Q_m . Un aérosol avec un débit Q_a est injecté via une fente circulaire de rayon a , découpée sur la plaque supérieure du SMTC. De la même manière que pour le SMEC, l'aérosol est sélectionné dans la zone interplaques par la combinaison de deux forces : d'une part une force de viscosité due aux flux aérauliques, et d'autre part une force de thermophorèse due à la présence d'un gradient thermique entre les deux plaques du dispositif. L'aérosol sélectionné Q_s est extrait par le trou central situé sur la plaque inférieure du SMTC.

Contrairement au SMEC, la présence d'un gradient de température modifie les débits volumiques d'entrée et de sortie de l'air filtré Q_c et de l'aérosol Q_a . Nous montrerons par la suite qu'une bonne maîtrise des débits et des températures dans la zone de sélection des particules est indispensable pour un bon fonctionnement du dispositif. Nous allons, en conséquent, présenter les différentes étapes de la conception du SMTC qui nous ont permis d'imposer dans la zone de sélection des particules des profils de températures et de vitesses homogènes et constant.

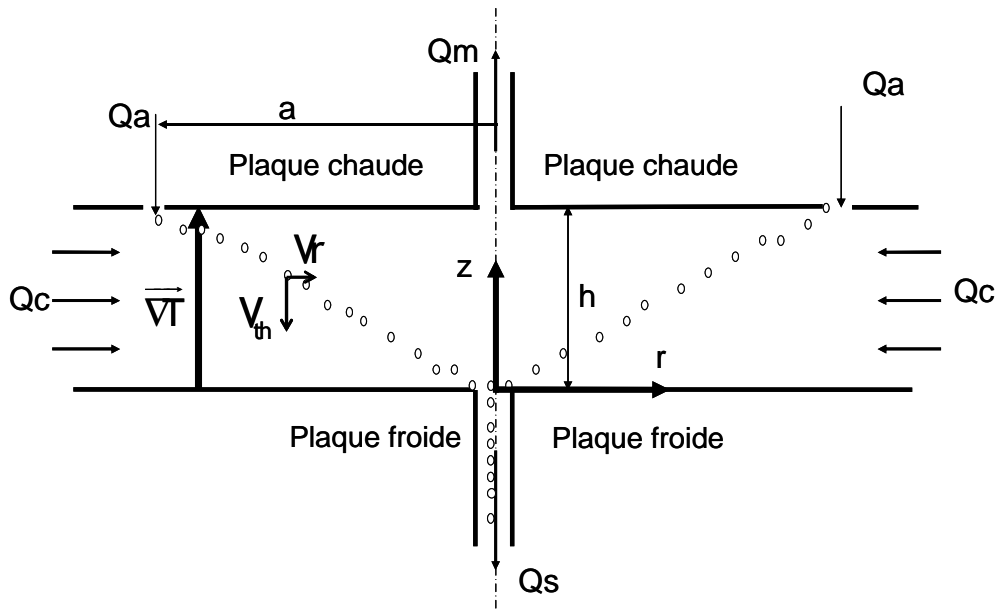


Figure 2.4 : Schéma de principe du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire.

On présente sur la figure 2.5 une vue en coupe du SMTC. Comme le SMEC, le SMTC est composé de deux disques parallèles séparés de 4 mm. Le choix des technologies de chauffage et de refroidissement de la plaque chaude et de la plaque froide, ainsi que le choix des matériaux ont été fait afin de garantir un gradient de température homogène et constant tout au long de la zone de sélection. Les plaques chaude et froide sont constituées en aluminium (AU4G) pour ses bonnes tenues mécaniques et conductivité thermique (235 W/m.K), ce qui permet de favoriser l'homogénéité des températures et d'éviter un trop important gradient de température sur l'épaisseur des plaques. De plus, le faible coefficient de dilatation de l'aluminium (22,9 $\mu\text{m}/\text{m.K}$) permet de minimiser les effets de dilatation du matériau et donc, les incertitudes sur les cotes géométriques du dispositif, notamment le rayon d'injection de l'aérosol a égal à 100 mm. Ce dernier point sera abordé de façon plus approfondi dans le chapitre 3.

Afin de minimiser les échanges de chaleurs par conduction entre la partie chauffée et la partie refroidie du dispositif, nous avons du faire le choix d'un matériau avec une faible conductivité thermique. Le matériau choisi est de l'Epoxy HT330-R qui est un stratifié de fibres de verre et de résine EPOXY haute température. Ce matériau avec sa très faible conductivité thermique (0,3 W/m.K) et avec un faible coefficient de dilatation (13 $\mu\text{m}/\text{m.K}$) permet donc, d'une part de minimiser les effets de conductions entre les deux plaques et, d'autre part, de maintenir la distance h entre les deux plaques lors de la mise en température du dispositif.

La plaque chaude est chauffé par le biais de deux éléments de chauffe qui sont des résistances électriques de puissance 450 W. Le premier élément de chauffe est un disque chauffant de 18 cm de diamètre situé au centre de la plaque chaude. Le deuxième élément chauffant est une résistance électrique en forme de couronne de 5 cm de large concentrique avec le premier élément chauffant. Les résistances sont situées de part et d'autre de la fente d'injection de l'aérosol dans le SMTC. Ces deux résistances électriques sont représentées sur la figure 2.6 avec la fente d'injection de l'aérosol. Le premier élément de chauffe (résistance interne à la fente d'injection sur la figure 2.6) permet d'imposer la température voulue sur la surface de la plaque supérieure du SMTC et correspond à la zone de sélection des particules. Le deuxième élément de chauffe (résistance externe à la fente d'injection sur la figure 2.6) permet d'imposer la température voulue sur une plaque supérieure du SMTC correspondant à la zone d'équilibre thermique du SMTC. Cette dernière zone permet d'avoir un profil de température entre la plaque chaude et la plaque froide établit lorsque le débit d'air filtré Q_c atteint le rayon d'injection de l'aérosol. L'utilisation de ces deux résistances électriques permet à la plaque supérieure d'être chauffée entre 20°C et 230°C.

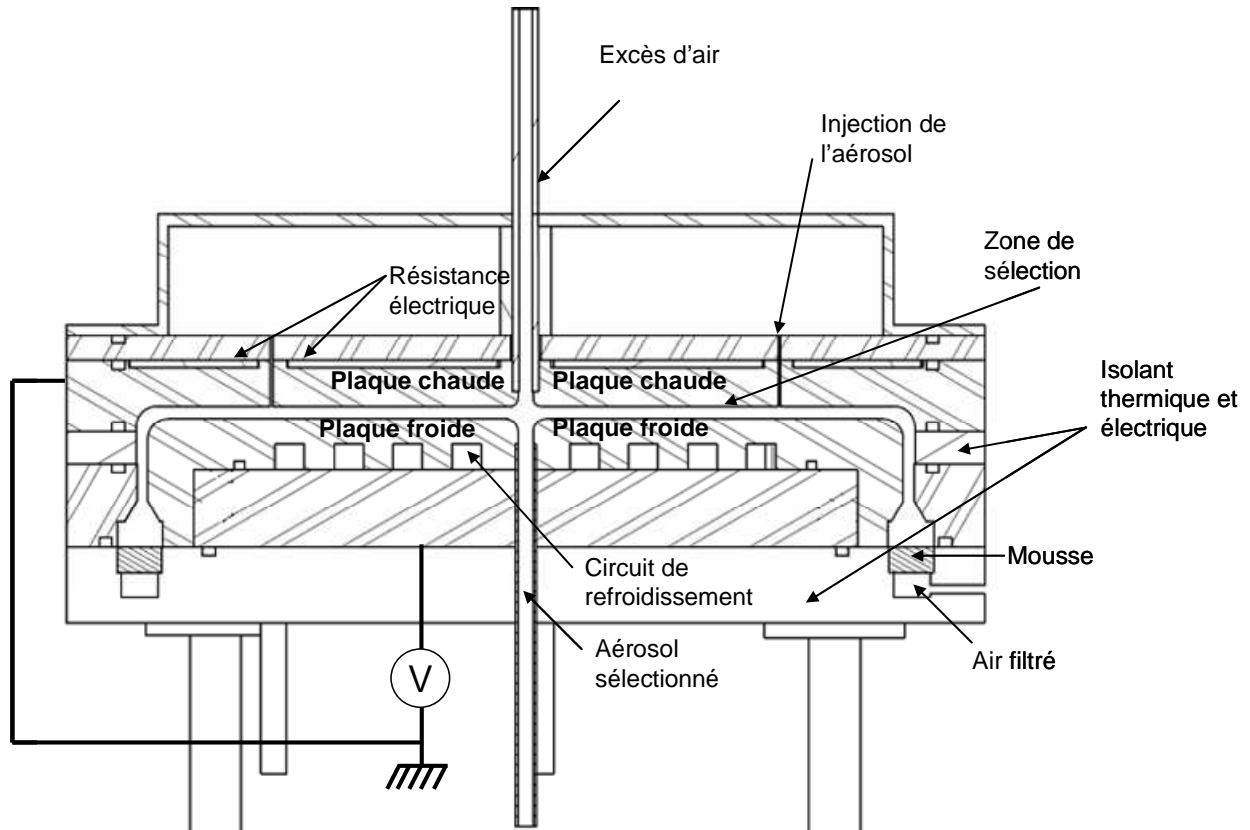


Figure 2.5 : Vue en coupe du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire

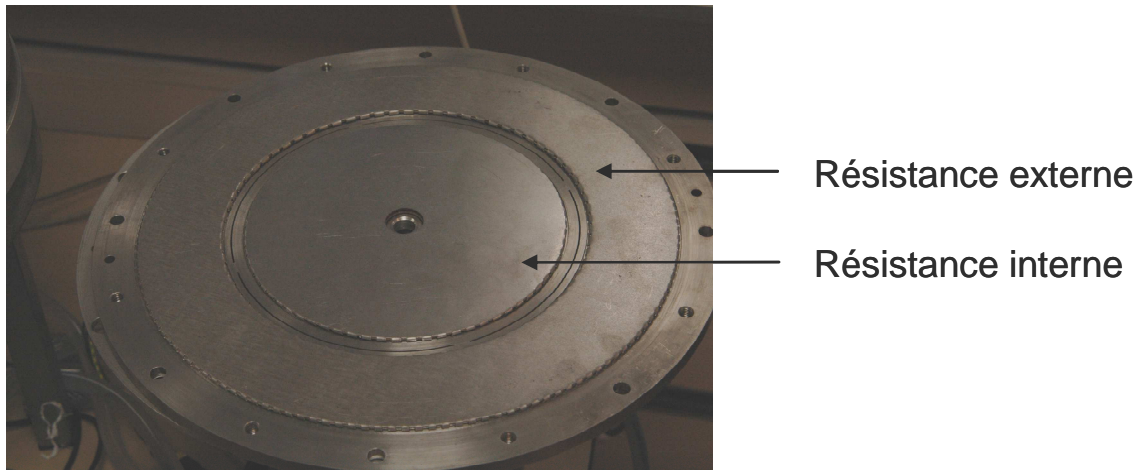


Figure 2.6 : Vue de dessus des résistances électriques de la plaque supérieure du SMTc avec la fente d'injection de l'aérosol

Le disque inférieur, d'un diamètre égal à 296 mm, est refroidi par le biais d'eau en circuit fermé. Le disque a été usiné afin d'intégrer deux circuits indépendants assurant le passage du fluide réfrigéré. Un groupe froid de 950 W permet de refroidir le fluide (eau) à des températures variant entre -10°C et 40°C avec une précision de $0,5^{\circ}\text{C}$. On représente sur la figure 2.7 une vue en coupe des deux circuits indépendants de refroidissement avec les entrées et les sorties du fluide.

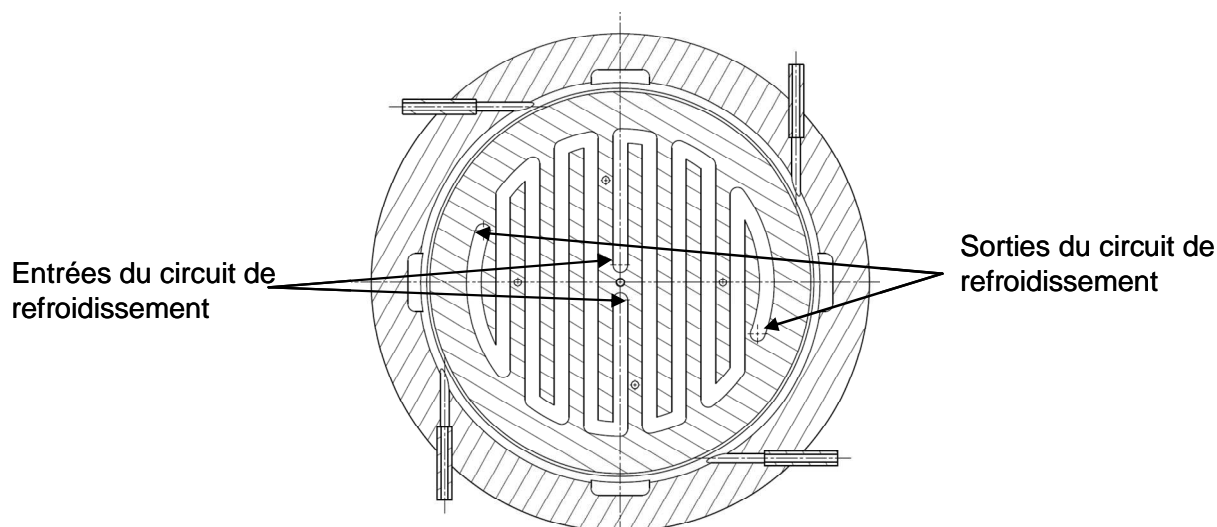


Figure 2.7 : Vue en coupe du circuit de refroidissement du disque inférieur du SMTC

Pour le contrôle des températures du disque supérieur chaud et du disque inférieur froid, le SMTC comporte 7 thermocouples type J, introduits dans le matériau, à 5 mm de la surface interne des disques. Un thermocouple contrôle la température de la résistance externe, les autres thermocouples contrôlent les températures des disques chaud et froid (3 thermocouples pour chaque disque) à différentes distances du centre du SMTC. Ainsi, les thermocouples contrôlent respectivement les températures au centre (extraction de l'aérosol et de l'air filtré), à 5 cm du centre du SMTC (ce qui correspond au milieu de la zone de sélection des particules) et 10 cm du centre du SMTC (fente d'injection de l'aérosol). Le dernier thermocouple contrôle la température de la résistance externe du disque chaud.

Une armoire électrique permet de contrôler l'ensemble des températures fournies par les 7 thermocouples. Deux régulateurs nous permettent d'imposer la température de consigne des résistances interne et externe de la plaque chaude, tandis que la température de consigne de la plaque froide est imposée par le groupe froid. L'ensemble thermocouples/armoire électrique nous permet ainsi de vérifier en continu l'homogénéité des températures sur l'ensemble des surfaces du disque chaud et du disque froid.

Le débit d'aérosol Q_a est injecté par la partie haute du SMTC dans un volume tampon de 2,6 L. Les parois en aluminium de ce volume tampon situé sur le disque chaud sont chauffées par conduction thermique, cela permet à l'aérosol d'être chauffé à la même température que le disque supérieur sans générer de dépôt à l'intérieur de ce volume. L'aérosol passe ensuite par une fente circulaire de 200 mm de diamètre. Cette fente de 1 mm de largeur est usinée dans le disque supérieur et comporte quatre points de jonction de 1 cm (observable sur la figure 2.6) permettant de lier l'ensemble du disque supérieur.

L'air filtré Q_c est introduit par la partie basse du SMTC par une entrée radiale. Il s'écoule tout au long de la périphérie du SMTC et traverse une mousse poreuse qui, de part sa perte de charge, permet d'homogénéiser et de laminariser l'écoulement. L'air filtré prend ensuite un écoulement radial entre le disque supérieur et le disque inférieur. La figure 2.8 représente une vue de la face interne du disque inférieur avec la mousse à travers laquelle passe l'air filtré.

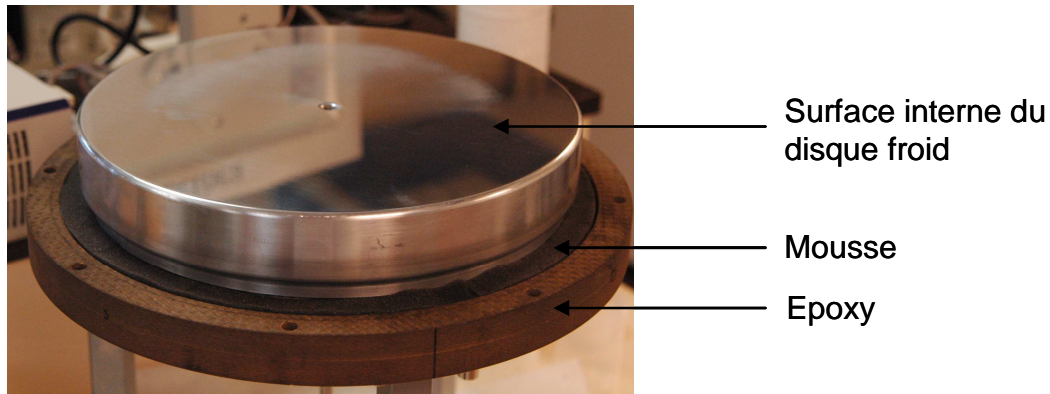


Figure 2.8 : Vue de la face interne de la plaque inférieure du SMTC avec la mousse permettant l'homogénéisation du débit d'air filtré Q_c .

L'aérosol et l'air filtré se rejoignent alors dans la zone de sélection, l'aérosol formant un film mince près du disque supérieur véhiculé par l'air filtré. Il est important que ces deux courants s'écoulent conjointement mais sans se mélanger.

Le gradient de température imposé entre les deux disques provoque la déviation des particules qui sont donc sélectionnées par le SMTC et extraites par un tube axial situé au centre du disque froid. L'air filtré est extrait par un tube axial situé au centre du disque chaud.

On présente sur les figures 2.9 et 2.10 une vue des faces internes du disque froid (figure 2.9) et du disque chaud (figure 2.10). La fente d'injection de l'aérosol et la couronne d'époxy assurant l'isolation thermique entre les deux disques sont également observables sur la figure 2.10. Afin que la rugosité des parois interne des disques ne perturbent pas l'écoulement dans la zone de sélection des particules, les faces internes ont subi un polissage (poli miroir).



Figure 2.9 : Face interne de la plaque inférieure du SMTC



Figure 2.10 : Face interne de la plaque supérieure du SMTC, avec la fente d'injection de l'aérosol

On présente sur la figure 2.11 une vue globale du SMTC assemblé, avec les disques chaud et froid, le volume tampon et la résine époxy servant d'isolant thermique entre les deux disques.

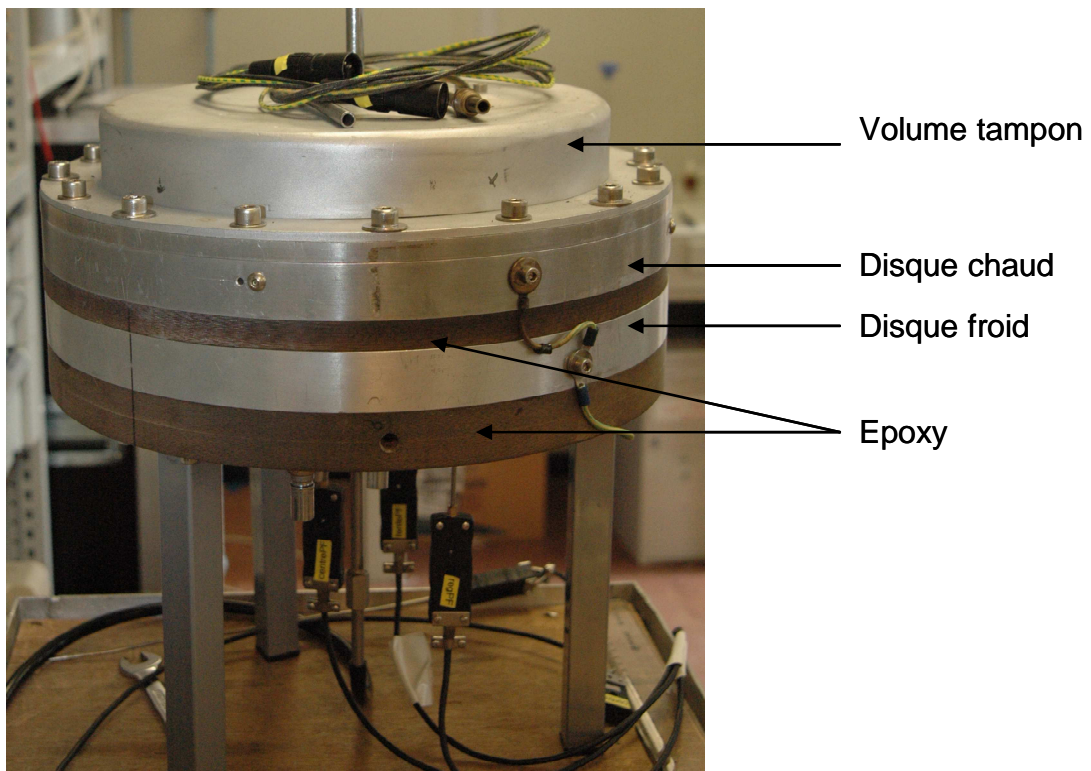


Figure 2.11 : Vue d'ensemble du SMTC monté sans son isolation externe

Dans l'objectif de valider les dimensions géométrique du SMTC et son fonctionnement sans la présence de gradient de température, le SMTC a été conçu pour fonctionner en mode électrique, soit en version SMEC. Pour cela, le disque inférieur du dispositif peut être mis sous haute tension par l'intermédiaire d'une connexion BNC. Le disque inférieur est isolé du reste du bâti par la pièce en Epoxy qui sert d'isolant électrique (en plus d'isolant thermique). Le reste du bâti étant mis à la terre, un champ de potentiel électrique peut être imposé entre les deux disques et ainsi permettre au SMTC de fonctionner en mode SMEC différentiel à trou central (figure 2.3).

2.3. Fonction de transfert du SMTC

La performance de ce type de dispositif est décrite par une fonction de transfert P , qui est la probabilité qu'une particule entrant dans le dispositif soit sélectionnée par celui-ci. Une particule est considérée comme ayant été sélectionnée si, après être entrée par la fente d'injection d'aérosol avec le débit Q_a dans l'analyseur, elle ressort par l'orifice d'extraction d'aérosol.

Dans la version électrique du dispositif (SMEC), la fonction de transfert est défini en utilisant la mobilité électrique Z . L'expression analytique de la fonction de transfert est déterminée par l'utilisation de la méthode d'analyse de Knutson et Whitby (1975) basée sur un changement de variable, ce qui évite d'avoir une connaissance détaillée de la structure du champ de vitesse.

Cette méthode nous donne la fonction de transfert P d'un analyseur de mobilité électrique sous la forme (Mesbah, 1993) :

$$P = \frac{1}{Q_a} \cdot \text{Max} \left[0, \min \left(Q_a, Q_c - |Q_c - 2\pi Z \Delta\phi^*| \right) \right], \quad (2.1)$$

où $\Delta\phi^*$ représente l'intégrale d'une fonction relative au champ électrique. Nous représentons sur la figure 2.12 la fonction de transfert d'un SMEC à dépôt (figure 2.1). Sur cette figure, P représente la probabilité d'extraction d'une particule, Z la mobilité électrique de la particule, U la tension aux bornes du dispositif, G un paramètre géométrique du SMEC et Q_c et Q_a représentent respectivement les débits volumiques de l'air filtré et de l'aérosol.

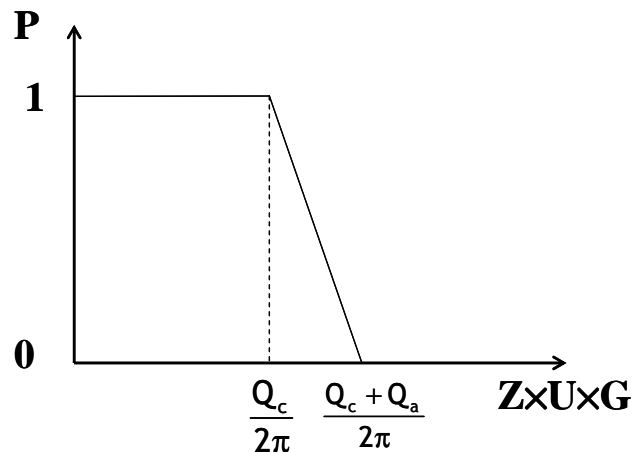


Figure 2.12 : Fonction de transfert d'un SMEC à dépôt, (Q_a représente le débit d'aérosol et Q_c le débit d'air filtré dans le SMEC).

La figure 2.13 représente la fonction de transfert d'un SMEC différentiel à trou central (figure 2.3) en considérant que les débits d'entrée et de sortie d'aérosol sont identiques à Q_a ainsi que ceux d'entrée et de sortie d'air qui sont égaux à Q_c . Avec ce type de dispositif, les particules sont sélectionnées avec des paramètres G , Z , Q_a et Q_c constant et par une variation de la tension U aux bornes de l'analyseur. On se propose de mettre en place une fonction de transfert du SMTC incluant l'effet d'un gradient de température sur la sélection des particules.

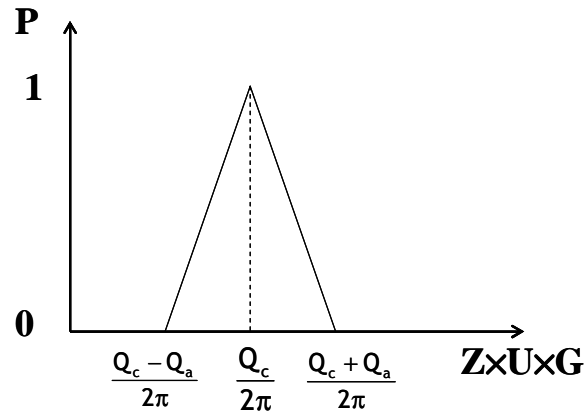


Figure 2.13 : Fonction de transfert d'un SMEC différentiel à trou central, (Q_a représente le débit d'aérosol et Q_c le débit d'air filtré dans le SMEC).

Afin de déterminer l'expression analytique de la fonction de transfert incluant la thermophorèse, nous allons utiliser, par analogie, la méthode d'analyse de Knutson et Whitby (1975) basée sur le changement de variable.

Soit r et z les coordonnées radiale et axiale, et \vec{U} et \vec{V}_{th} les vecteurs représentant respectivement le champ de vitesse aéroulique du fluide et le champ de vitesse de thermophorèse des particules.

Nous devons tout d'abord faire plusieurs hypothèses :

- les champs de vitesse du fluide et de thermophorèse son axi-symétriques et stationnaires,
- les écoulements sont laminaires et incompressibles : $\text{div}(\vec{U}) = 0$,
- le champ de vitesse thermophorétique est considéré laminaire et incompressible : $\text{div}(\vec{V}_{th}) = 0$,
- l'écoulement est considéré comme quasi-statique : les effets d'inertie (temps de relaxation) des particules sont négligés, nous supposons donc qu'elles suivent toujours les lignes de courant.

Nous avons vu dans le chapitre 1 (relation 1.40) que la vitesse de thermophorèse d'une particule s'exprime sous la forme :

$$\vec{V}_{th} = -K_{th} \frac{\eta_g}{\rho_g T_g} \vec{\nabla} T \quad (2.2)$$

Dans l'expression 2.2, les différents termes à droite de l'égalité sont fortement dépendants de la température. Or, la variation de température entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC peut atteindre 200°C . La vitesse de thermophorèse d'une particule va donc être dépendante de sa position locale entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC. Par conséquent, on peut se poser la question de la validité de l'hypothèse $\text{div}(\vec{V}_{th}) = 0$. On peut cependant, grâce à la géométrie particulière du SMTC, montrer que cette hypothèse est juste. Dans un premier temps, on peut supposer, dans toute la région entre les plaques, que l'écoulement est radial et le gradient de température est vertical. Ensuite l'équation de chaleur se traduit par la relation :

$$\rho_g \cdot C_p \cdot \vec{U} \cdot \vec{\nabla} T = \nabla (k_g \vec{\nabla} T) \quad (2.3)$$

Comme le gradient de température est constant radialement et est perpendiculaire à l'écoulement, on peut considérer que la contribution convective est nulle, soit $\vec{U} \cdot \vec{\nabla}T = 0$. On déduit donc de la relation 2.3 que $k_g \cdot \vec{\nabla}T = \text{constante}$.

En utilisant le nombre de Prandtl qui représente le rapport entre la diffusivité de quantité de mouvement (ou viscosité cinématique) et la diffusivité thermique, la relation 2.2 devient :

$$\vec{V}_{th} = -K_{th} \frac{\eta_g}{\rho_g T_g} \vec{\nabla}T = -K_{th} \frac{\eta_g / k_g}{\rho_g T_g} (k_g \cdot \vec{\nabla}T) = -K_{th} \frac{Pr}{\rho_g T_g C_p} (k_g \cdot \vec{\nabla}T). \quad (2.4)$$

Dans la dernière équation, le terme $\rho_g T_g$ est constant et Pr, K_{th} et C_p peuvent également être considérés comme constant. Nous pouvons donc considérer que $\vec{\nabla}V_{th} = 0$.

Avec ces hypothèses, nous pouvons donc définir la fonction de courant (Knutson and Whitby, 1975) :

$$\psi(r, z) = \int^r \int^z (rU_r dz - rU_z dr), \quad (2.5)$$

où U_r et U_z représentent les composantes axiales et radiales du champ de vitesse aéraulique. De la même façon, pour un champ de vitesse thermophorétique des particules V_{th} , nous pouvons déterminer une fonction de flux de champ thermophorétique ω :

$$\omega(r, z) = \int^r \int^z (rV_{th(r)} dz - rV_{th(z)} dr), \quad (2.6)$$

où $V_{th(r)}$ et $V_{th(z)}$ représentent les composantes radiales et axiales du champ de vitesse thermophorétique.

Le principe de notre analyse est basé sur le remplacement des coordonnées r et z par les différentes fonctions que nous venons de définir. La figure 2.14 représente les fonctions de courant ψ et les fonctions de vitesse de thermophorèse ω , ψ_1 et ψ_2 représentent les limites du débit d'injection d'aérosol et ψ_3 ψ_4 les limites du débit d'aérosol sélectionné. Le débit volumique entre deux lignes de courant ψ'' et ψ' est donné par la relation :

$$Q(\psi'', \psi') = 2\pi |\psi'' - \psi'|. \quad (2.7)$$

En accord avec la figure 2.14, la relation 2.4 donne :

$$Q_a = 2\pi(\psi_2 - \psi_1) \text{ le débit d'aérosol injecté dans le SMTC}, \quad (2.8)$$

$$Q_s = 2\pi(\psi_4 - \psi_3) \text{ le débit d'aérosol sélectionné par le SMTC}, \quad (2.9)$$

$$Q_c = 2\pi(\psi_4 - \psi_2) \text{ le débit d'air filtré injecté dans le SMTC}, \quad (2.10)$$

$$Q_m = 2\pi(\psi_3 - \psi_1) \text{ le débit d'extraction de l'air}. \quad (2.11)$$

Dans un analyseur électrique on peut considérer les débits d'injection et d'extraction d'aérosol d'une part et les débits d'injection et d'extraction de l'air filtré d'autre part égaux. Dans le cas du SMTC, les températures d'injection (température de la plaque chaude) et les températures d'extraction (température de la plaque froide) sont différentes ; les débits volumiques correspondant sont différents et doivent donc être pris en compte dans l'établissement de la fonction de transfert.

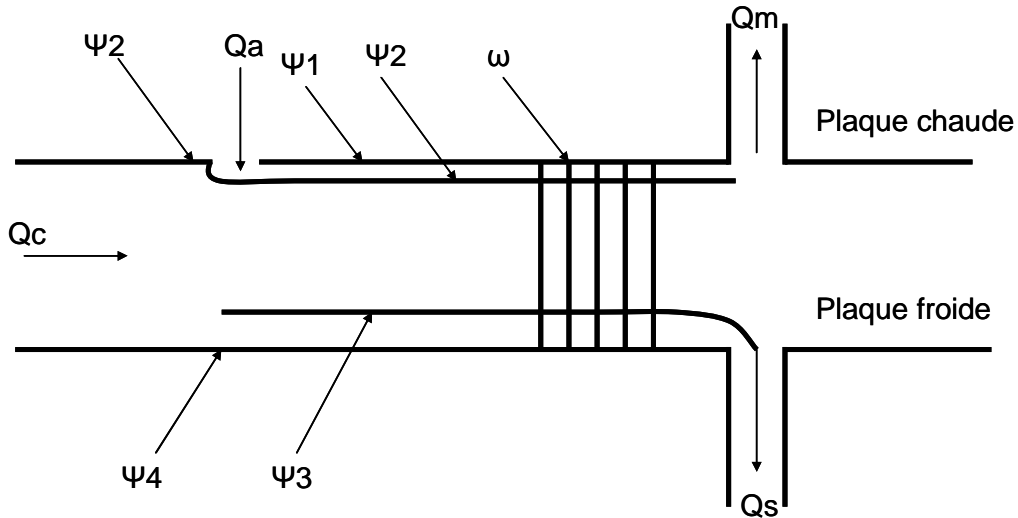


Figure 2.14 : Les fonctions de courant et champ de vitesse de thermophorèse dans le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire.

Si on considère que le champ de température est constant et qu'il n'y a pas d'autres glissement des particules par rapport aux lignes de courant que celui de la thermophorèse, la vitesse d'une particule dans la zone de sélection du SMTC est donnée à tout instant par :

$$\bar{V} = \bar{U} + \bar{V}_{th}, \quad (2.12)$$

où \bar{V}_{th} est la vitesse locale de thermophorèse de la particule.

De la même manière que pour les fonctions de courant et la fonction de flux de champ de vitesse thermophorétique, on peut définir une fonction de courant de la particule :

$$\varphi(r, z) = \int_{r,z} (rU_r dz - rV_{th} dr). \quad (2.13)$$

En développant la relation 2.12, on obtient :

$$\varphi(r, z) = \psi(r, z) + \omega(r, z). \quad (2.14)$$

Comme les particules suivent les lignes de courants φ constantes entre l'entrée et la sortie du SMTC, nous avons :

$$\varphi_{entrée} = \varphi_{sortie} = \text{constante}, \quad (2.15)$$

où $\varphi_{\text{entrée}}$ and φ_{sortie} représentent les valeurs de la fonction de courant de la particule à l'entrée et à la sortie du SMTC.

Cela implique :

$$\Delta\varphi = \varphi_{\text{sortie}} - \varphi_{\text{entrée}} = \Delta\psi + \Delta\omega = 0 \text{ soit } \Delta\psi = -\Delta\omega. \quad (2.16)$$

Entre l'entrée et la sortie du SMTC, nous avons :

$$\Psi_{\text{out}} = \Psi_{\text{in}} - (\omega_{\text{out}} - \omega_{\text{in}}) = \Psi_{\text{in}} - \Delta\omega^*, \quad (2.17)$$

où $\Delta\omega^*$ est évalué grâce à l'expression 2.6 calculée entre l'entrée et la sortie de l'aérosol du dispositif :

$$\varphi(r, z) = \int_{r, z} r((U_r + V_{\text{thr}})dz - r(U_z + V_{\text{thz}})dr), \quad (2.18)$$

avec les vitesses de l'écoulement selon z et de thermophorèse selon r qui sont négligées, soit $V_{\text{thr}}=0$ et $U_z = 0$.

Calculons maintenant la probabilité P d'extraction des particules, qui est rappelons-le, la fonction de transfert du SMTC. La probabilité P est la fraction de l'intervalle $[\psi_2, \psi_1]$ qui arrive au niveau de la zone d'extraction, c'est-à-dire, $[\psi_2 + \Delta\omega^*, \psi_1 - \Delta\omega^*]$, dans l'intervalle $[\psi_3, \psi_4]$.

Ce qui donne pour les particules arrivant en amont du trou d'extraction :

$$P = \frac{1}{\psi_2 - \psi_1} (\psi_4 - (\psi_1 + \Delta\omega^*)) = \frac{1}{Qa} \left(\frac{1}{2}(Qa + Qs) + \frac{1}{2}(Qc + Qm) - 2\pi\Delta\omega^* \right). \quad (2.19)$$

et pour celles arrivant en aval :

$$P = \frac{1}{\psi_2 - \psi_1} (\psi_3 - (\psi_2 + \Delta\omega^*)) = \frac{1}{Qa} \left(\frac{1}{2}(Qc + Qm) - \frac{1}{2}(Qa + Qs) - 2\pi\Delta\omega^* \right). \quad (2.20)$$

En posant de plus que $P = 0$ si la particule est collectée par les parois ou reprise par la buse de sortie d'air, et que $P = 1$ si la particule sort par le trou d'extraction, on a alors :

$$P = \frac{1}{Qa} \cdot \text{Max} \left[0, \min \left(Qa, Qs, \frac{1}{2}(Qa + Qs) - \left| \frac{1}{2}(Qc + Qm) - 2\pi\Delta\omega^* \right| \right) \right], \quad (2.21)$$

où $2\pi\Delta\omega^*$ représente le débit global de thermophorèse entre la plaque chaude, la plaque froide et entre l'entrée et la sortie de l'aérosol (relation 2.18).

Nous définissons dans la relation 2.22 une vitesse de thermophorèse effective \tilde{V}_{th} représentative de la vitesse de thermophorèse entre l'entrée et la sortie du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire. Cette vitesse effective correspond à la vitesse donnant le débit global de thermophorèse définit par :

$$2\pi \cdot \Delta\omega^* = \pi a^2 \cdot \tilde{V}_{th}, \quad (2.22)$$

où a est le rayon de la fente d'injection de l'aérosol.

Nous représentons sur la figure 2.15 la fonction de transfert du Spectromètre Thermophorétique Circulaire où la probabilité P est exprimé en fonction de la vitesse effective de thermophorèse et du rayon d'injection de l'aérosol a .

On observe une allure différente entre la fonction de transfert du SMTC présentée sur la figure 2.15 et la fonction de transfert du SMEC différentiel à trou central présenté sur la figure 2.13. Cette différence est exclusivement due aux différences de débits volumiques. Ainsi, la hauteur de la fonction de transfert du SMTC n'est pas égale à 1, mais est fonction du rapport entre le débit d'aérosol sélectionné Q_s et le débit d'aérosol injecté Q_a . L'allure de la fonction de transfert représentée sur la figure 2.15 est valable pour $Q_s < Q_a$, ce qui permet d'obtenir une probabilité d'extraction toujours inférieure ou égal à 1. La hauteur du plateau étant définie par Q_s/Q_a , Q_s est donc la valeur minimale qu'il faut choisir dans la relation 2.18 de façon à obtenir $P_{max} = Q_s/Q_a$.

Le débit correspondant à la sélection d'une particule par thermophorèse diffère de celui correspondant à la sélection d'une particule par différence de potentiel. Ainsi le débit de sélection pour le SMEC différentiel correspond au débit d'air filtré Q_c . Pour le SMTC, le débit de sélection est dépendant des débits d'injection et d'extraction de l'air filtré.

On remarque également la présence d'un palier correspondant au maximum de la fonction de transfert. Ce palier résulte de la différence entre le débit volumique d'injection de l'aérosol et le débit volumique d'extraction de l'aérosol, dans le cas où on fait fonctionner l'appareil avec une recirculation d'air entre Q_c et Q_m ce qui impose la conservation de ces débits lorsqu'ils sont exprimés en masse.

Les différences observées entre la fonction de transfert électrique et thermique résulte de la différence de température entre la plaque chaude et la plaque froide qui a pour conséquence de rendre les débits d'injection et d'extraction de l'aérosol et de l'air filtré différents. Cette différence de débit est bien prise en compte par la fonction de transfert thermique et va avoir une influence sur la détermination de la vitesse effective de thermophorèse des particules sélectionnées.

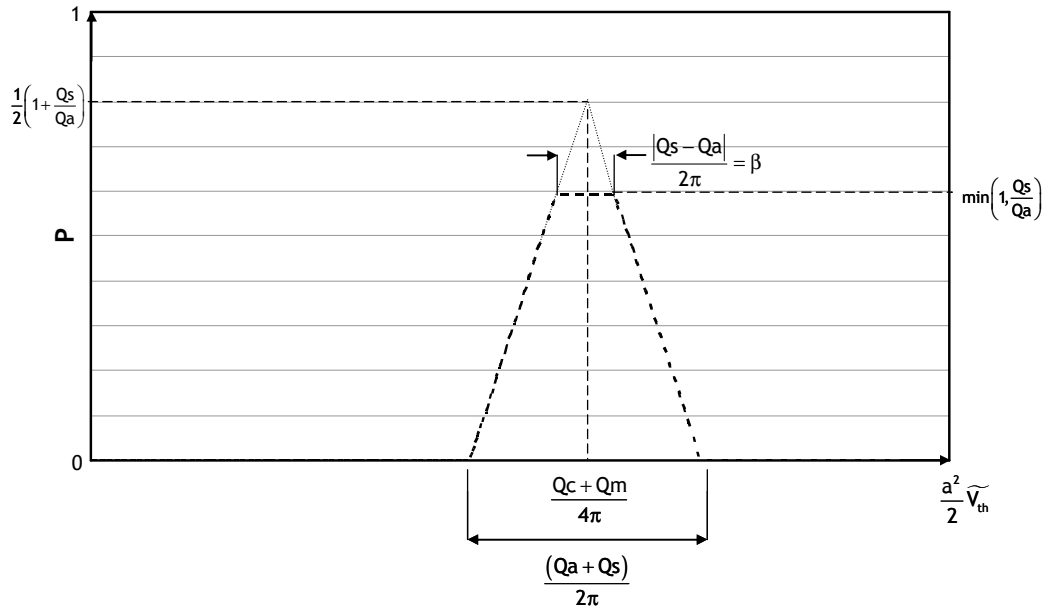


Figure 2.15 : Représentation de la fonction de transfert du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire (SMTC)

La vitesse effective de thermophorèse peut être déduite à partir du maximum de la fonction de transfert qui s'exprime selon la relation 2.18 par :

$$P_{\max} \text{ pour } \frac{1}{2}(Qc + Qm) - 2\pi a^2 \tilde{V}_{th} = 0. \quad (2.23)$$

En développant les relations 2.21 et 2.22, on obtient pour P_{\max} , une relation entre la vitesse effective de thermophorèse des particules sélectionnées, le débit d'air filtré Qc , le débit d'extraction de l'air Qm et le rayon d'injection de l'aérosol a :

$$\tilde{V}_{th} = \frac{(Qc + Qm)}{2\pi \cdot a^2}. \quad (2.24)$$

En conséquent, la vitesse effective de thermophorèse des particules sélectionnées par le SMTC correspond au maximum de la fonction de transfert présentée sur la figure 2.15. De plus, en considérant un profil radial de température constant, la conservation des débits volumiques entre l'entrée et la sortie du SMTC donne :

$$Qc + Qa = Qm + Qs. \quad (2.25)$$

Les relations 2.24 et 2.25 nous permettent d'obtenir une relation directe entre la vitesse effective de thermophorèse, le débit d'air filtré Qc , le rayon d'injection de l'aérosol a et la différence de débit volumique entre l'injection et l'extraction de l'aérosol :

$$\tilde{V}_{th} = \frac{1}{a^2} \left(\frac{Qc}{\pi} + \beta \right), \quad (2.26)$$

avec

$$\beta = \frac{|Qs - Qa|}{2\pi}. \quad (2.27)$$

On peut noter que la vitesse effective de thermophorèse des particules sélectionnées est indépendante de la distance h entre la plaque chaude et la plaque froide. Cependant, il est évident que cette distance interplaques doit être définie pour analyser et interpréter cette mesure de la vitesse de thermophorèse comme étant dépendante du gradient de température.

Pour établir expérimentalement une fonction de transfert, il est préférable de faire varier un seul paramètre. Pour établir la fonction de transfert électrique, Mesbah (1993) et Le Bronnec (1998) garde un débit d'air filtré Q_c et un débit d'aérosol Q_a constant et font varier la différence de tension U , pas à pas, entre les plaques du SMEC. Dans notre cas, il est plus difficile de faire varier un gradient de température entre les deux plaques du SMTC, ceci implique un long temps d'attente pour permettre au dispositif d'être en équilibre thermique. Pour résoudre ce problème, nous réaliserons les expériences avec le SMTC pour un débit d'aérosol Q_a et un gradient de température entre la plaque chaude et la plaque froide constants. Pour établir nos fonctions de transfert thermique, nous ferons seulement varier le débit d'injection d'air filtré Q_c .

Pour montrer l'influence des paramètres Q_c , Q_a et du gradient de température entre la plaque chaude et la plaque froide, nous représentons dans un premier temps sur la figure 2.16 l'influence du gradient de température sur la fonction de transfert du SMTC. La figure 2.16 représente trois fonctions de transfert établies pour trois gradients de température 50 750, 38 250 et 12 750 K/m. Ces gradients de températures correspondent respectivement à des différences de température entre la plaque chaude et la plaque froide de 200, 150 et 50 °C et pour une distance h entre les plaques constante de 4 mm. De plus, nous prenons, pour cette représentation théorique des débits Q_a et Q_s constants et égaux à 0,3 l/min.

Nous pouvons observer sur la figure 2.16, que l'augmentation du gradient de température entre les deux plaques du SMTC nécessite une augmentation du débit d'air filtré Q_c pour sélectionner les particules. L'allure de la fonction de transfert théorique représentée sur la figure 2.16 est très proche des représentations de fonction de transfert électrique du SMEC. Ce résultat est dû au fait qu'on prend un débit d'injection d'aérosol Q_a égal au débit d'extraction Q_s .

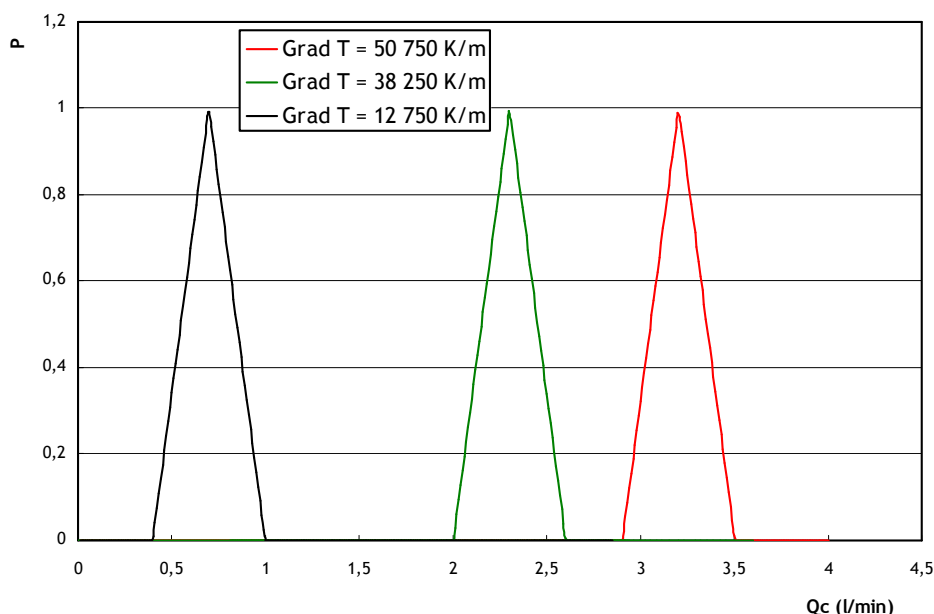


Figure 2.16 : Influence du gradient de température sur la fonction de transfert du SMTC, en fonction du débit d'air filtré avec $Q_a = Q_s = 0,3$ l/min

Dans la figure 2.15, la hauteur et les largeurs de la base et du plateau de la fonction de transfert sont dépendant du rapport des débits d'injection et d'extraction de l'aérosol. Hors, dans le cadre de notre dispositif, lorsque le gradient de température augmente la différence de température entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC augmente et par la même

conséquence la différence entre les débits volumiques d'injection et d'extraction de l'aérosol augmente.

Nous représentons sur la figure 2.17 l'influence de la différence entre le débit volumique d'injection de l'aérosol Q_a et le débit volumique d'extraction de l'aérosol Q_s sur la fonction de transfert du SMTC pour un gradient de température constant et égal à 50 750 K/m. On observe que le plateau, la base et la hauteur de la fonction de transfert augmente lorsque la différence entre Q_a et Q_s augmente. La résolution de ce type de dispositif se traduit par l'étude de la fonction de transfert associée. Plus précisément, la largeur à mi-hauteur ainsi que la base de la fonction de transfert sont des facteurs permettant de qualifier la résolution du SMTC. Ainsi, d'après les figures 2.15 et 2.17, la résolution du SMTC sera plus importante pour des différences entre Q_s et Q_a faible et donc pour des gradients de température faible.

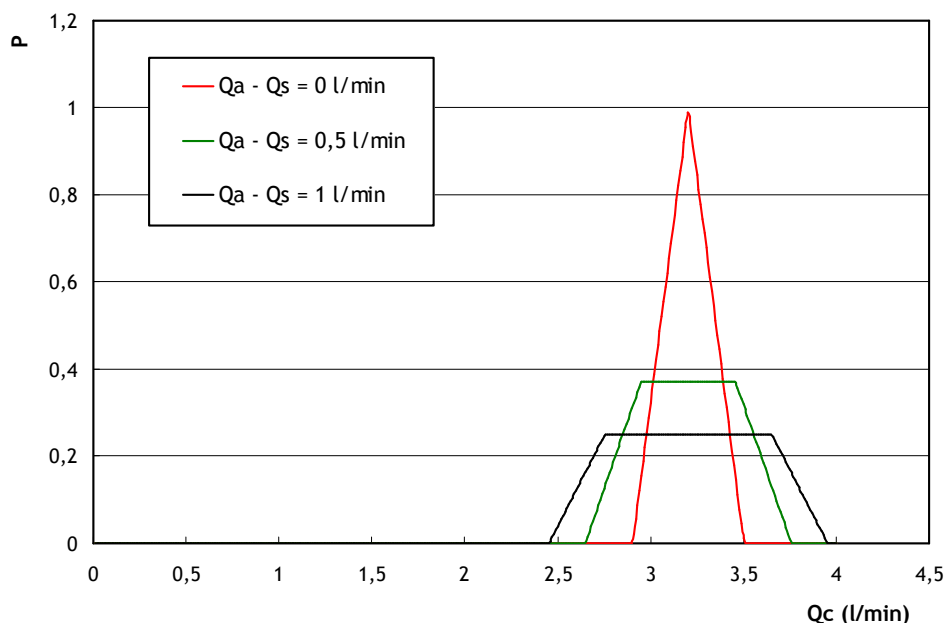


Figure 2.17 : Influence de la différence entre le débit volumique d'injection de l'aérosol Q_a et le débit volumique d'extraction de l'aérosol Q_s sur la fonction de transfert du SMTC.

2.4. Limites théoriques de fonctionnement

Pour fonctionner, le SMTC nécessite un certain débit d'air ainsi qu'un gradient de température imposant certaines limites de fonctionnement.

2.4.1. Écoulement

Afin de fonctionner correctement, les écoulements dans le SMTC doivent être laminaires. Il est donc possible de calculer un débit maximum d'utilisation du SMTC permettant de respecter cette condition.

Si on veut respecter un régime laminaire dans toutes les zones du SMTC, y compris la sortie d'évacuation d'air, ces écoulements doivent avoir un nombre de Reynolds Re inférieur à 2 400. Celui-ci correspond, dans le cas d'un cylindre, au passage du régime laminaire au régime turbulent. Si l'on regarde le schéma de principe du SMTC (figure 2.4), on s'aperçoit que la zone la plus potentiellement turbulente est le trou d'extraction d'air où les vitesses aérodynamiques sont les plus importantes. Donc si on se limite à un régime laminaire dans cette zone, tous les écoulements dans le reste du dispositif le seront également.

Pour le SMTC, ce trou d'extraction d'air a un diamètre de 6 mm. Il est donc possible de calculer la vitesse moyenne maximum de l'écoulement telle que le régime reste laminaire, ainsi que le débit maximum.

Nous avons dans le trou d'extraction :

$$Q_m = \bar{U} \cdot S = \frac{Re \cdot \eta_g \cdot S}{\rho_g \cdot d} = \frac{Re \cdot \eta_g \cdot \pi \cdot d}{4 \cdot \rho_g}, \quad (2.25)$$

où \bar{U} , S et d sont respectivement la vitesse moyenne maximum de l'écoulement, la section et le diamètre du trou d'extraction de l'air et ρ_g et η_g sont la masse volumique et la viscosité dynamique de l'air.

Sans présence de gradient de température, avec :

- $Re = 2400$,
- $\eta_g = \eta_g(23^\circ\text{C}) = 1,83245 \cdot 10^{-5} \text{ Pa.s}$,
- $\rho_g = \rho_g(23^\circ\text{C}) = 1,1965 \text{ Kg/m}^3$,
- $d = 6 \text{ mm}$,

nous obtenons dans ces conditions un Q_m max de 10,4 l/min. Sans présence de gradient de température, un débit d'air inférieur à 10 l/min nous garanti donc des écoulements laminaires dans toutes les parties du SMTC.

Cependant, dans le cadre de nos essais expérimentaux que nous décrivons dans les chapitres suivants, nous sommes amenés à utiliser des températures de plaque chaude et de plaque froide maximales respectivement égales à 230°C et 27°C . Ces températures vont modifier la viscosité dynamique et la masse volumique de l'air.

Nous avons en prenant une température de l'air égale à la moyenne des températures plaque chaude/plaque froide :

- $Re = 2400$,
- $\eta_g = \eta_g(130^\circ\text{C}) = 2,2839 \cdot 10^{-5} \text{ Pa.s}$,
- $\rho_g = \rho_g(130^\circ\text{C}) = 0,879 \text{ Kg/m}^3$,
- $d = 6 \text{ mm}$,

Avec ces nouvelles conditions, nous obtenons un débit maximal de 17,6 l/min, ce qui est bien supérieur à la valeur précédente.

- Il faut de plus noter que, dans la zone de sélection, il est possible d'imposer des débits plus importants. En effet, l'écoulement étant centripète, le fluide est constamment accéléré limitant ainsi la création de turbulence.

Nous considérons qu'un débit d'air inférieur à 10 l/min nous garantit un écoulement laminaire dans tout le dispositif.

2.4.2. Température

L'étude de la thermophorèse nécessite la présence d'un gradient de température et plus ce gradient thermique sera important, plus le phénomène de thermophorèse sera visible. Les limites des températures imposées à la plaque froide et à la plaque chaude dépendent de la nature des matériaux utilisés lors de la conception du SMTC. Si l'aluminium peut résister à de hautes températures (645°C), ce n'est pas le cas de la résine époxy qui assure l'isolation thermique entre

la plaque chaude et la plaque froide et des joints viton placé entre les différents éléments du système et assurant l'étanchéité du SMTC.

La température limite d'utilisation de l'époxy est de 260°C en continu et de 330°C en pointe. La température limite des joints viton haute température utilisés pour l'étanchéité du dispositif est de 250°C. Au dessous de ces températures, les propriétés physiques de l'époxy et des joints viton (élasticité, coefficient d'expansion...) ne changent pas.

Afin de conserver les propriétés physique des matériaux, nous avons choisis de ne pas imposer une température supérieure à 230°C au SMTC.

2.4.3. Taille des particules

La version d'origine du SMTC, le SMEC fonctionne, généralement bien, dans une gamme de dimension des particules allant de quelques dizaines de nanomètres jusqu'à 1 µm. Pour les particules les plus fines (aérosols ultrafin), les effets de diffusion deviennent importants et perturbent le bon fonctionnement du dispositif, introduisant des pertes et de la dispersion. Mesbah (1993) a développé pour le SMEC une fonction de transfert incluant la diffusion et remarque que la hauteur de la fonction de transfert diminue fortement. Pour Mesbah (1993) et Le Bronec (1998) la hauteur de la fonction de transfert donne une indication des pertes due à l'analyseur (effets électriques, impaction, interception directe) et l'aire sous la fonction de transfert permet de caractériser les pertes par diffusion dans l'analyseur. Pour réduire ces pertes par diffusion, Mesbah propose de réduire le temps de séjour dans le dispositif, soit par une augmentation des débits, soit par une diminution des dimensions.

Dans son étude sur le SMEC, Fissan *et al.* (1996) montre que ce dispositif est adapté aux fines particules (< 15 nm) mais remarque que les pertes dues à l'analyseur sont relativement importante (> 60 %) pour des particules de 15 nm.

Dans le cas du SMTC, au vue du changement de dimension par rapport au SMEC et de la présence du gradient de température, les pertes par diffusion peuvent ne pas être négligeables pour les fines particules. Le point sensible est la fente d'injection de l'aérosol qui peut être considéré comme un tube annulaire de 1 mm de largeur et de 2 cm de longueur (cf. figure 2.5). C'est en effet dans cette partie du dispositif que les faibles vitesses de l'aérosol associées à une faible section de passage peuvent créer de fortes pertes par diffusion des fines particules.

Nous présentons sur la figure 2.18 la fraction pénétrante en fonction du diamètre des particules dans la fente d'injection de l'aérosol. La fraction pénétrante de particule dans un conduit annulaire est donnée, pour la diffusion brownienne, par la relation suivante (Baron et Willeke, 2001) :

$$F_p = 1 - \exp(-0,03711 \cdot (1 - d_1 / d_2)^{1,317} Pe^{0,678}), \quad (2.27)$$

où d_1 et d_2 représente respectivement le diamètre interne et externe de la fente (200 et 202 mm) et Pe le nom de Peclet donné par :

$$Pe = \frac{U_m d_2^2}{4DL}, \quad (2.28)$$

où U_m est la vitesse moyenne de l'aérosol dans la fente d'injection, D le coefficient de diffusion et L la longueur de la fente d'injection (2 cm).

La figure 2.18 montre que les pertes par diffusion ne sont pas négligeables pour des tailles de particules inférieures à 50 nm. Ainsi par exemple, on observe des pertes par diffusion de 14 %. On observe donc des pertes importante pour particules de taille inférieur à 30 nm, ce qui devra être pris en compte lors de nos essais expérimentaux.

Pour les particules supérieures à 1 µm, nous avons vu sur la figure 1.1 dans le chapitre précédent que des effets de sédimentation pouvaient s'ajouter à la thermophorèse.

Pour une étude précise de la thermophorèse par le biais du SMTC, la taille des particules doit donc être comprise entre environs 30 nm et 1 000 nm.

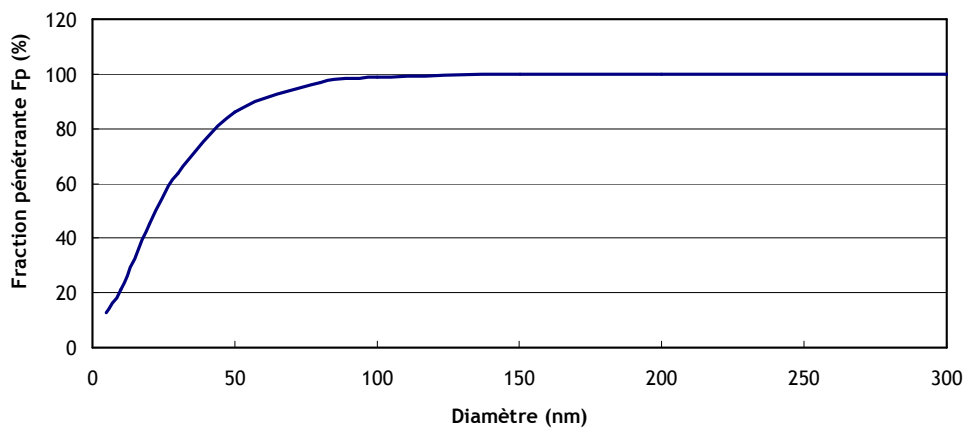


Figure 2.18 : Fraction pénétrante dans la fente d'injection (géométrie de canal annulaire).

2.5. Etude thermique du SMTC

Afin de vérifier, d'une part si les conditions d'écoulement restent bien laminaires et uniforme entre les deux disques et, d'autre part que les températures de surface des plaques chaude et froide sont uniformes, nous avons réalisés une étude thermo-aéraulique du SMTC par le biais du logiciel *SolidWorks*.

Nous allons présenter dans cette section les résultats obtenus lors de la simulation 3D des écoulements et des transferts thermiques dans le dispositif.

2.5.1. Simulation thermo-aéraulique du SMTC

La méthodologie de travail pour la réalisation de cette simulation est la suivante :

- simplification du modèle 3D géométrique à partir des plans 2D de conception du SMTC,
- réalisation de plusieurs maillages volumiques sur le modèle 3D,
- mise en données (prises en compte des caractéristiques thermophysiques du fluide et définition des conditions limites),
- réalisation et convergence des calculs,
- étude de l'influence de la taille du maillage sur les résultats,
- exploitation des résultats de profil de vitesse et de température dans le SMTC.

Nous représentons sur la figure 2.19 la modélisation du dispositif réalisée sur le logiciel *SolidWorks*. Le dispositif est constitué des sous ensembles suivants :

- une embase isolante,
- un disque froid contenant un circuit de refroidissement par circulation d'eau froide,
- un disque chaud contenant les deux résistances électriques,
- un anneau isolant thermique disposé entre le disque chaud et le disque froid,
- une cloche permettant la distribution de l'aérosol,
- un filtre en mousse permettant l'homogénéisation de l'air filtré,

- les interfaces avec les utilités (air froid, eau froide, air chargé en aérosol),
- le calorifuge, maintenu par trois coquilles en aluminium.

La géométrie du dispositif a été simplifiée afin de faciliter la mise en œuvre des calculs :

- simplification de la visserie, suppression des jeux,
- symétrisation de la géométrie et donc modification de la géométrie du circuit liquide.

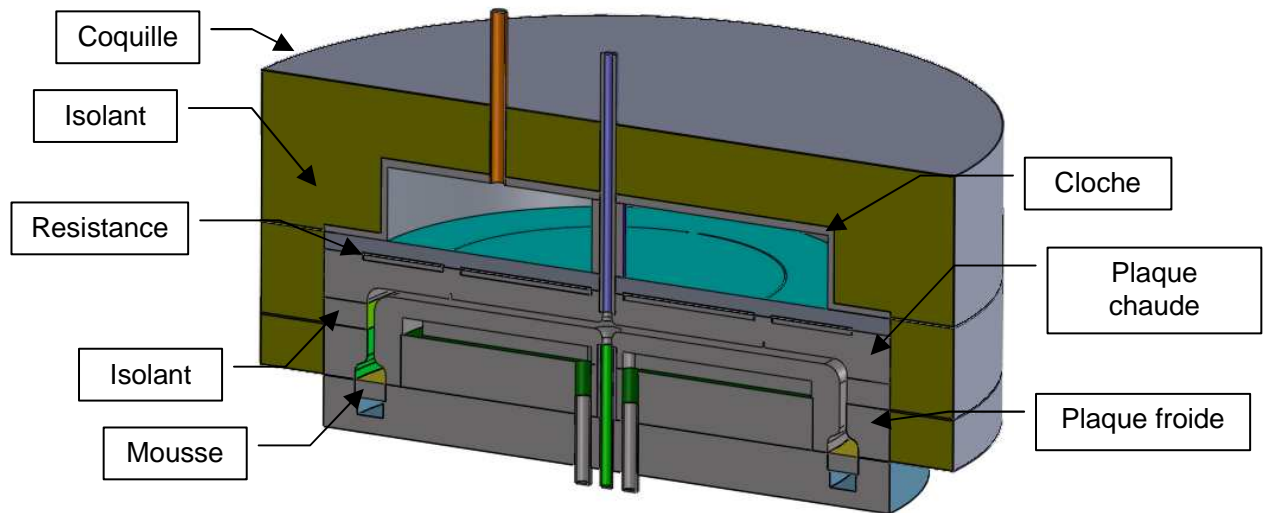


Figure 2.19 : Représentation du SMTC pour l'étude thermo-aéraulique du dispositif.

Les propriétés physiques des matériaux utilisées lors de la simulation sont les suivantes :

- les plaques chaude et froide, les coquilles sont en aluminium 4G :
 - Masse volumique = 2689 kg/m^3
 - Conductivité thermique = $235 \text{ W/m } ^\circ\text{C}$
 - Chaleur spécifique = $950 \text{ J/kg } ^\circ\text{C}$.
- la résistance thermique est en mica + blindage acier :
 - Masse volumique = 2500 kg/m^3
 - Conductivité thermique = $100 \text{ W/m } ^\circ\text{C}$
 - Chaleur spécifique = $800 \text{ J/kg } ^\circ\text{C}$.
- l'embase et l'isolant sont en Epoxy :
 - Masse volumique = 1850 kg/m^3
 - Conductivité thermique = $0,3 \text{ W/m } ^\circ\text{C}$
 - Chaleur spécifique = $1400 \text{ J/kg } ^\circ\text{C}$.
- le calorifuge est en laine de roche :
 - Masse volumique = 150 kg/m^3
 - Conductivité thermique = $0,04 \text{ W/m } ^\circ\text{C}$
 - Chaleur spécifique = $840 \text{ J/kg } ^\circ\text{C}$.
- la mousse est représentée par un milieu poreux ayant les caractéristiques suivantes :
 - sa porosité est égale à 95 %,

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

- la taille des pores est égale à 0,1 mm.

Afin de simuler le transfert de chaleur entre le dispositif et l'air ambiant, des conditions convectives (coefficients de transfert et température à l'infini) ont été imposées sur les parois externes du dispositif.

Le calcul d'un flux de chaleur transmis par convection naturelle s'effectue de la manière suivante.

Dans un premier temps, nous calculons les nombres adimensionnels de Grashof et de Prandtl donnés par les relations :

$$Gr = \frac{B \cdot g \cdot \Delta T \cdot \rho_g^2 \cdot L^3}{\eta_g^2}, \quad (2.29)$$

où B représente le coefficient de dilatation de l'air, L la longueur caractéristique, g l'accélération de la pesanteur et ΔT la différence de température entre la surface et la température à l'infini qui est constante et égale, dans notre étude, à 20°C.

Le nombre de Prandtl est défini par la relation :

$$Pr = \frac{C_p \cdot \eta_g}{k_g}, \quad (2.30)$$

où C_p est la capacité thermique massique de l'air et k_g la conductivité thermique de l'air.

Après le calcul de ces nombres adimensionnés, nous calculons le nombre de Nusselt par le biais de la corrélation :

$$Nu = a(Gr.Pr)^n, \quad (2.31)$$

où les coefficients a et n dépendent de l'orientation des faces du dispositif et sont représenté dans le tableau 2.1.

2.1 Tableau récapitulatif des coefficients a et n pour le calcul du nombre de Nusselt.

Orientation	a	n
Verticale	0.59	1/4
Vers le haut	0.14	1/3
Vers le bas	0.27	1/4

A partir du nombre de Nusselt, on peut calculer les coefficients de convection naturelle h, tenant compte de l'orientation des faces, à partir de la relation :

$$h = \frac{Nu \cdot k_g}{L}. \quad (2.32)$$

La relation 2.32 nous permet d'obtenir les coefficients de convection naturelle en fonction de l'orientation suivants :

- h face verticale = 5 W/m²K,
- h face horizontale vers le bas = 3 W/m²K,
- h face horizontale vers le haut = 6 W/m²K.

Nous représentons sur la figure 2.20 un récapitulatif des conditions de convection utilisées pour calculer l'échange de chaleur entre les faces extérieurs du SMTc et l'air ambiant.

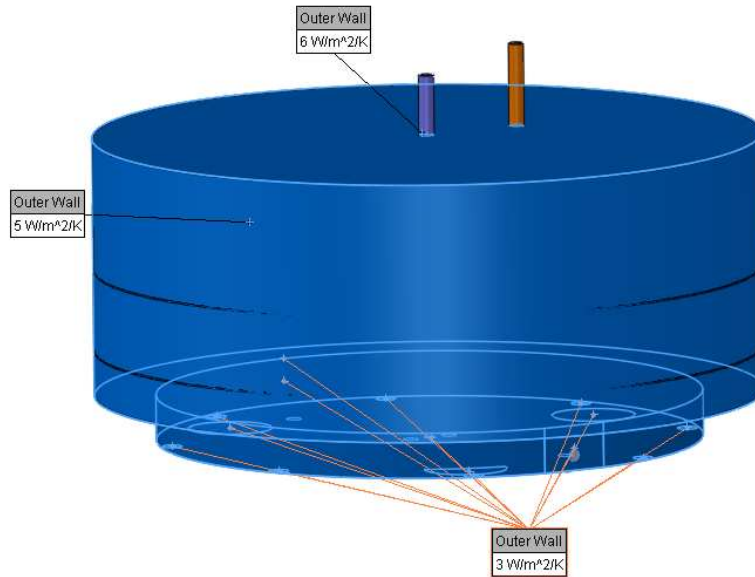


Figure 2.20 Représentation des conditions convectives sur les faces extérieures du SMTC.

Le flux de chaleur dans la plaque chaude est imposé par les résistances électriques dont la puissance thermique est imposée à 450 W.

Le refroidissement de la plaque froide ainsi que le comportement aéroulque et thermique de l'air filtré et de l'aérosol sont déduits des conditions aux limites sur les fluides imposées :

- Entrée d'air filtré :
 - On impose la pression = P atmosphérique
 - On impose la température = 20 °C
- Entrée d'air chargé en aérosol :
 - On impose le débit = 1 l/min
 - On impose la température = 20 °C
- Sortie air filtré :
 - On impose le débit = 10 l/min
- Sortie air chargé en aérosol :
 - On impose le débit = 1 l/min
- Entrée eau de refroidissement :
 - On impose le débit = 4 l/min
 - On impose la température = 20 °C
- Sortie eau de refroidissement :
 - On impose la pression atmosphérique

Les débits d'air filtré et d'aérosol sont choisis afin d'étudier le comportement thermo-aéroulque du SMTC dans les conditions maximales d'utilisation des différents débits ainsi que les températures. On fait ainsi l'hypothèse que si l'écoulement reste bien laminaire et uniforme entre les deux disques et que les températures de surface des plaques chaude et froide sont également uniformes dans ces conditions maximales, alors l'utilisation de débits et de températures inférieures ne modifieront pas les conclusions de notre étude.

Un maillage de type hexaédrique non structuré (raffinement local) a été réalisé. Ce maillage a été raffiné au niveau des passages et des parois. Plusieurs maillages ont été réalisés afin de déterminer le maillage optimal avant adaptation. Le maillage final comporte environ 2 000 000 de mailles. La figure 2.21 représente une vue en coupe du maillage réalisé pour la représentation du SMTC.

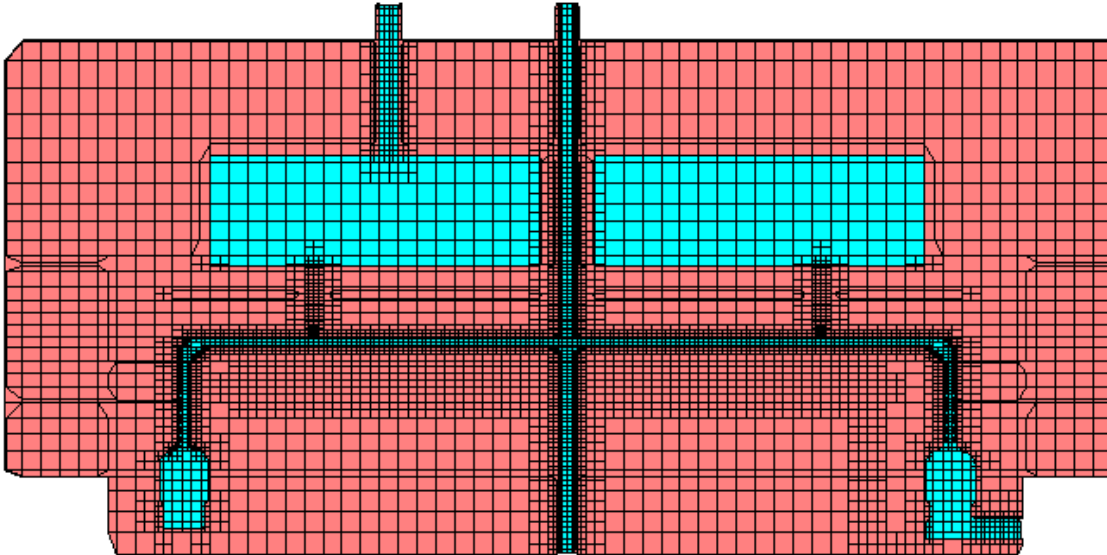


Figure 2.21 Représentation du maillage réalisé dans le cadre de l'étude thermo-aéroulque du SMTC (vue en coupe)

L'influence du maillage sur la solution a été évaluée pour plusieurs maillages dont les tailles varient entre 500 000 et 2 000 000 de mailles. Cette influence a été évaluée sur des grandeurs quantitatives, à savoir les vitesses, les températures et les pressions.

Il a aussi été étudié l'influence de la simplification de symétrie où le calcul se fait sur la moitié de la géométrie du système, ce qui permet de diviser la taille du maillage par 2.

2.2 : Résultats quantitatifs de l'influence de la taille du maillage sur les températures et pression dans le dispositif.

Taille du maillage	1 000 000	2 000 000	Symétrique (1 000 000)
DeltaP circuit eau	5373.1	5059.1	6588.0
Tmoy P chaude (°C)	200.6	197.6	199.0
Tmax P chaude (°C)	206.9	204.3	205.3
Tmoy P froide (°C)	20.6	20.6	20.6
Tmax P froide (°C)	20.9	20.9	20.8
T sortie eau (°C)	20.3	20.3	20.3
Tmoy resistance (°C)	200.0	197.0	198.3
Tmax resistance (°C)	207.2	204.7	205.5

Nous représentons dans le tableau 2.2 les résultats quantitatifs de l'influence de la taille du maillage sur les températures et pression dans le dispositif. On constate que l'accord quantitatif est satisfaisant entre les maillages réalisés. L'écart avec le modèle symétrique n'est significatif que sur la perte de charge du circuit d'eau, ce qui est cohérent avec la modification géométrique nécessaire pour rendre celui-ci symétrique.

La figure 2.2 représente une comparaison qualitative des résultats de température obtenus entre un maillage à 1 000 000 de maille et un maillage de 2 000 000 de mailles. On remarque que les résultats obtenus entre les deux maillages réalisés sont très proches.

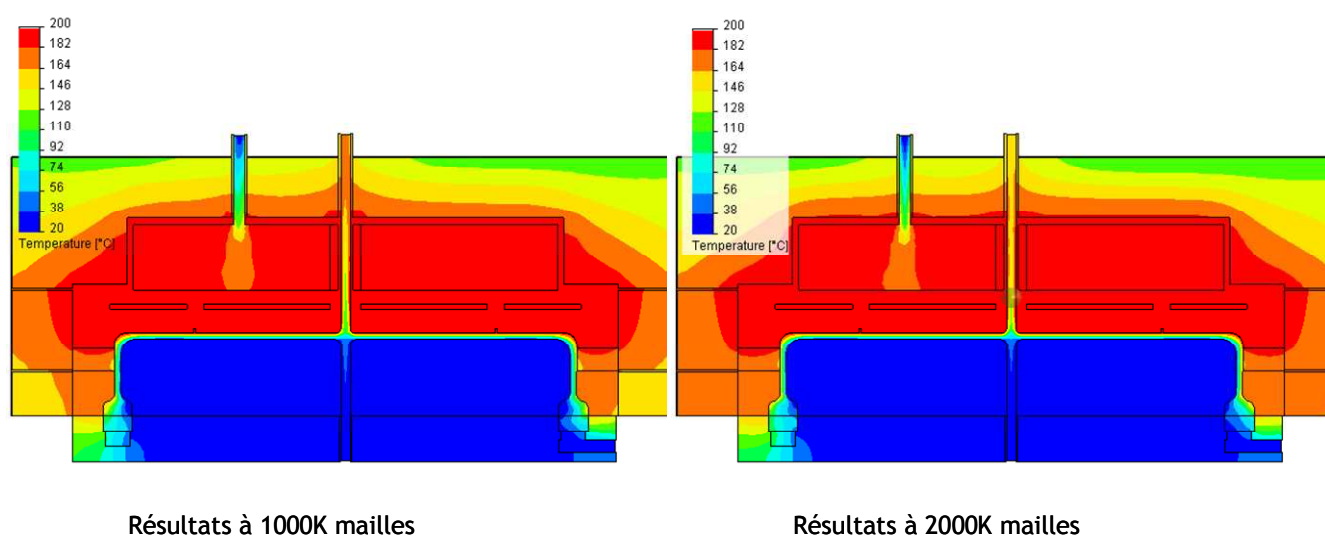


Figure 2.22 : Comparaison qualitative des résultats de température obtenus entre un maillage à 1 000 000 de maille et un maillage de 2 000 000 de mailles.

Nous avons, dans cette section, présenté la démarche de l'étude thermo-aéroulque du SMTC, les conditions aux limites et l'influence des différents maillages réalisés sur les résultats. Nous allons présenter dans la suite de ce chapitre les résultats concrets obtenus en termes de profil de vitesse et de profil de température dans le SMTC.

2.5.2. Profil de vitesse dans le SMTC

Nous allons présenter les profils de vitesse obtenus par le biais de cette étude numérique. Dans un premier temps, nous présentons sur la figure 2.23 les résultats qualitatifs de profil de vitesse obtenu dans le SMTC.

On constate que la vitesse de l'air filtré décélère fortement dès l'arrivée au niveau de la mousse. L'injection de l'air étant radiale, la mousse a pour fonction de réduire la vitesse de l'air filtré et de permettre une homogénéisation de celui-ci. La vitesse de l'écoulement accélère ensuite entre le disque chaud et le disque froid avant de sortir par les tubes centraux. On observe une importante dissymétrie entre les deux sorties centrale, la vitesse de l'air étant 10 fois supérieure à celle de la sortie de l'aérosol, ceci étant dû à un débit d'air 10 fois supérieur au débit d'aérosol. On observe également que les vitesses les plus élevées sont obtenues dans l'extraction de l'air sur la partie supérieure du dispositif. Ce résultat est en accord avec nos conclusions du chapitre 2.4.1 montrant qu'en considérant un régime laminaire dans l'extraction de l'air, on pouvait considérer l'écoulement comme laminaire dans l'ensemble du SMTC.

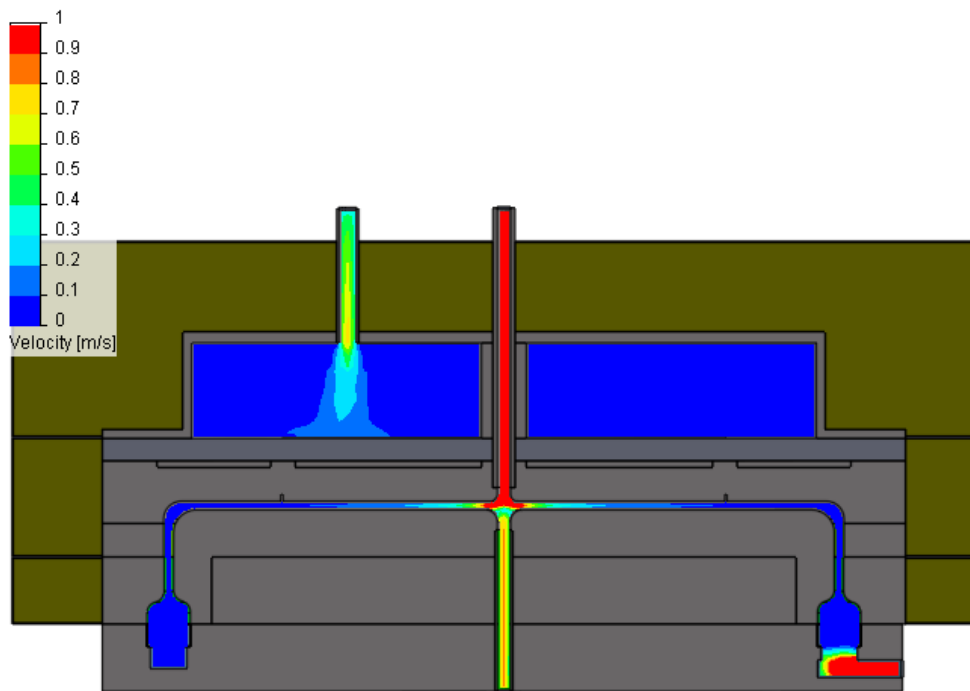


Figure 2.23 : Profil de vitesse dans le SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.

Pour une meilleure observation du profil de vitesse dans la zone d'extraction de l'air et de l'aérosol, nous avons représenté sur la figure 2.24 les vecteurs vitesse dans cette zone. Nous constatons une accélération du fluide entre les deux disques qui est due au mouvement centripète de l'écoulement. Les vitesses observées sont nettement plus importante dans l'extraction de l'air que dans l'extraction de l'aérosol.

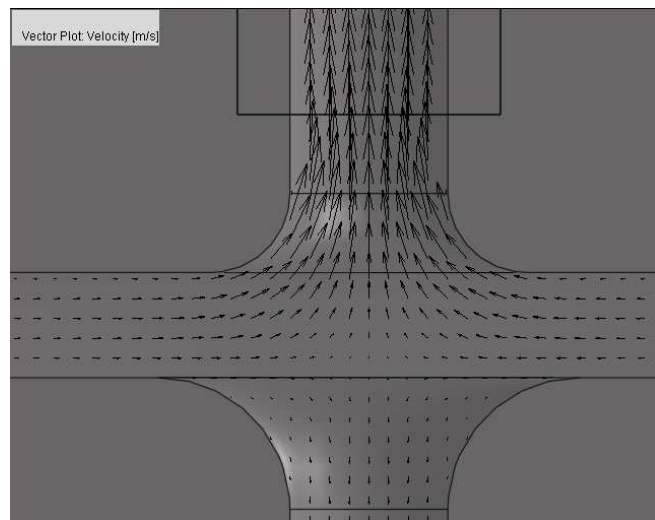


Figure 2.24 : Représentation des vecteurs vitesse des extractions de l'air filtré et de l'aérosol.

Nous représentons le profil de vitesse entre le disque chaud et le disque froid du SMTC par une vue de dessus sur la figure 2.25. On remarque, comme sur la figure 2.23 et 2.24 une accélération des vitesses dans l'entrefer. De plus, le champ de vitesse dans la zone de sélection est purement radial et laminaire et la distribution tangentielle est homogène. Cependant, on note une assez faible dissymétrie entre le côté situé vers l'entrée d'air radial par rapport à celui opposé. Cet écart est de l'ordre de 9 %. Pour réduire cette dissymétrie, nous avons lors de la conception du SMTC, utilisé une mousse avec une porosité plus faible afin d'augmenter la résistance au fluide du côté de l'injection de l'air filtré.

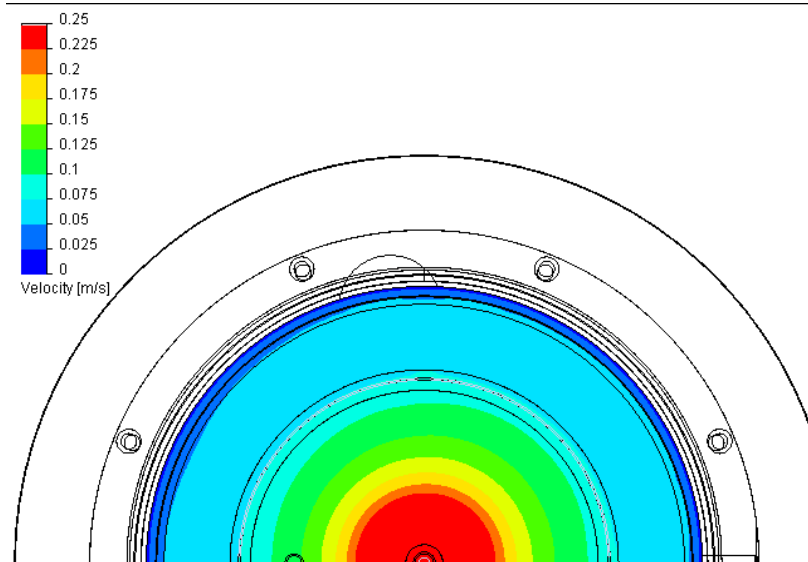


Figure 2.25 : Profil de vitesse dans le SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue de dessus.

D'un point de vue quantitatif, nous représentons sur la figure 2.26 l'évolution du profil de vitesse entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un débit d'air filtré Q_c égal à 10 l/min et un débit d'aérosol égal à 1 l/min et en fonction de la distance de la plaque froide et pour différentes abscisses radiales du centre du dispositif. Les abscisses radiales de 0,12 m, 0,09 m et 0,03 m correspondent respectivement au profil de vitesse avant et après l'injection de l'aérosol entre les deux disques et au profil de vitesse près des extractions de l'air filtré et de l'aérosol. On remarque que le profil de vitesse entre les deux disques est de forme parabolique, ce qui correspond à un écoulement de Poiseuille. En raison de la configuration spécifique du SMTC, la vitesse radiale augmente en approchant du centre du dispositif.

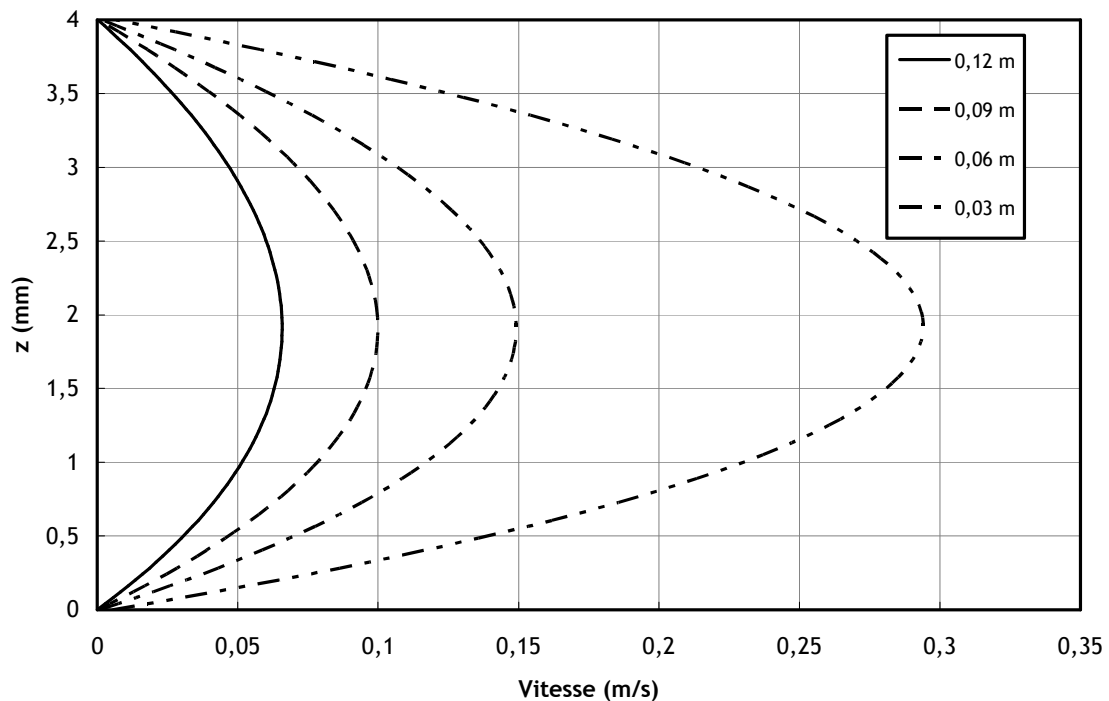


Figure 2.26 : Evolution du profil de vitesse entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un débit d'air filtré Q_c égal à 10 l/min et un débit d'aérosol égal à 1 l/min à différentes distances de la plaque froide.

2.5.3. Profil de température dans le SMTC

Nous représentons sur la figure 2.27 le profil de température dans le SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique. Nous observons que la zone de préchauffage semble suffisante pour permettre au gradient de température de s'établir avant l'introduction de l'aérosol. La cloche permet aussi un chauffage de l'aérosol pour qu'il puisse être injecté dans la zone de sélection à la même température que la plaque chaude. On n'observe pas d'inhomogénéité dans le profil de température dans l'entrefer.

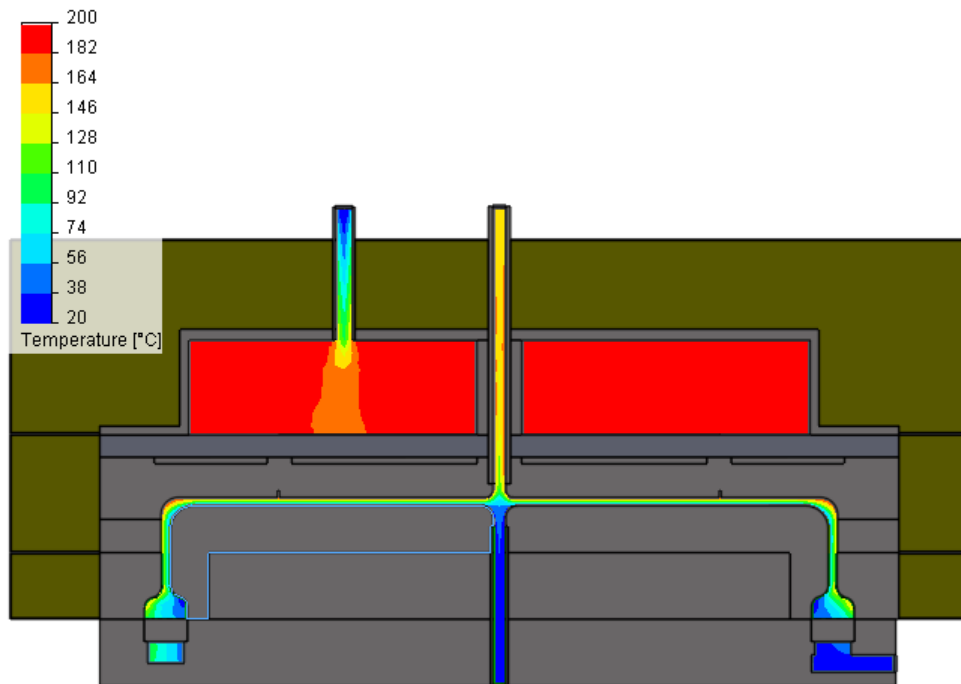


Figure 2.27 : Profil de température dans le SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.

De la même manière que pour le profil de vitesse, nous avons voulu connaître le profil de température dans la zone d'extraction de l'air filtré et de l'aérosol, au centre du SMTC. Le profil de température dans cette zone est représenté sur la figure 2.28. En raison des plus fortes vitesses observées pour l'extraction de l'air que pour l'extraction de l'aérosol, nous observons sur l'axe du SMTC un déplacement du gradient de température vers le haut.

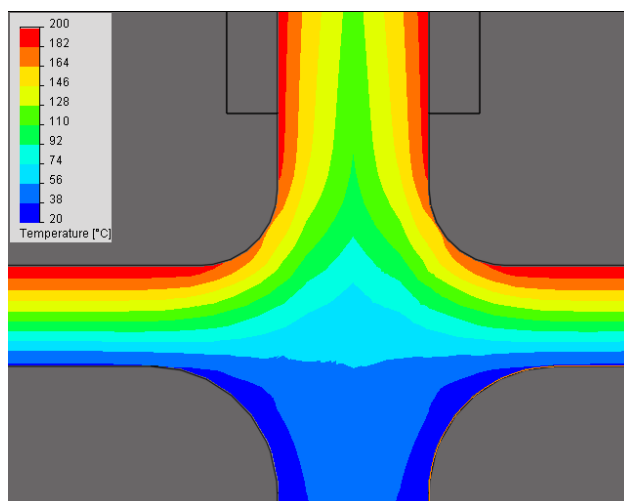


Figure 2.28 : Profil de température des extractions de l'air filtré et de l'aérosol obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.

La figure 2.29 représente le profil de température du fluide entre le disque chaud et le disque froid obtenu par le biais de l'étude numérique sur une vue de dessus. On remarque que la température de l'écoulement entre les deux disques est homogène tangentiellement. Cependant, on peut noter toutefois un faible effet de la fente et surtout l'écart de température entre la zone interne et externe de la résistance.

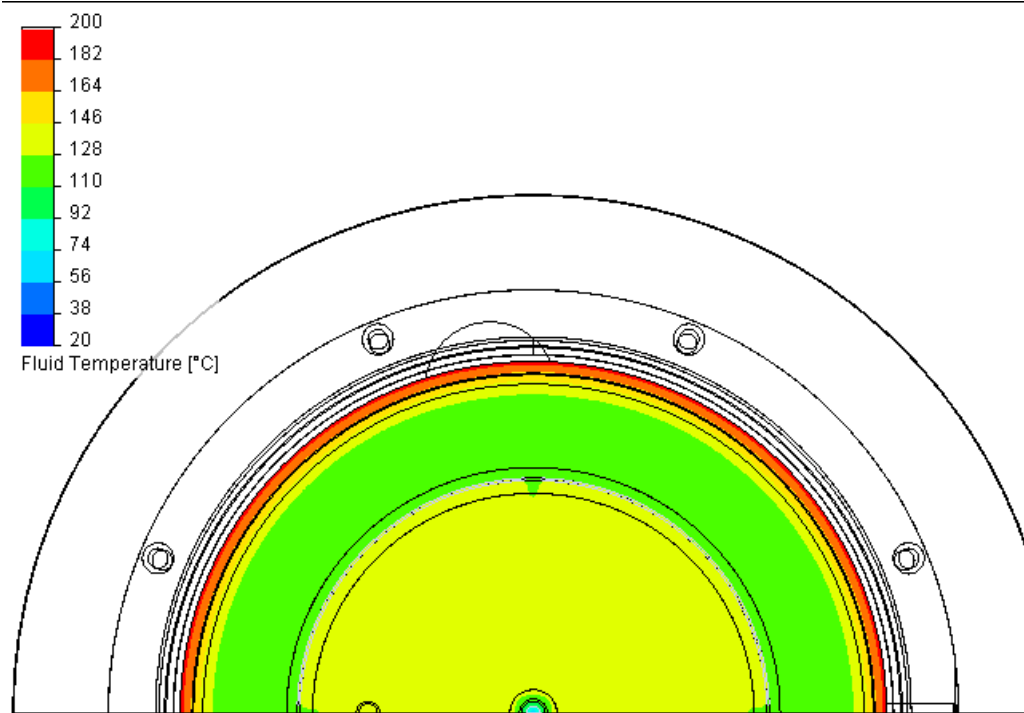


Figure 2.29 : Profil de température du fluide entre le disque chaud et le disque froid obtenu par le biais de l'étude numérique, vue de dessus.

D'un point de vue quantitatif, nous représentons sur la figure 2.30 l'évolution du profil de température entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTc pour un débit d'air filtré Q_c égal à 10 l/min et un débit d'aérosol égal à 1 l/min et en fonction de la distance de la plaque froide et pour différentes abscisses radiales du centre du dispositif. Les abscisses radiales de 0,12 m, 0,09 m et 0,03 m correspondent respectivement au profil de vitesse avant et après l'injection de l'aérosol entre les deux disques et au profil de vitesse près des extractions de l'air filtré et de l'aérosol. On remarque que le profil radial de température entre les deux disques est constant dans la zone de sélection de l'aérosol malgré l'accélération de l'écoulement. De plus on remarque que le gradient de température vertical est linéaire et peu dépendant du rayon. Comme sur la figure 2.29, on observe une différence entre le profil de température correspond à la zone de préchauffage (0,12 m) et à la zone de sélection. Cet écart est particulièrement observable lorsqu'on se rapproche de la plaque chaude.

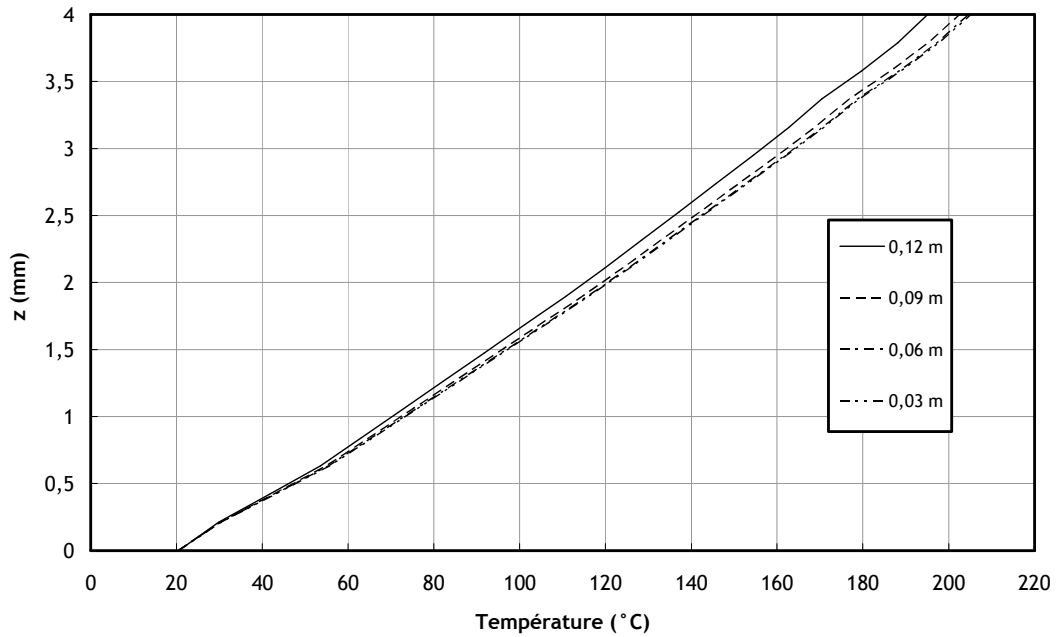


Figure 2.30 : Evolution du profil de température entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un débit d'air filtré Q_c égal à 10 l/min et un débit d'aérosol égal à 1 l/min à différentes abscisses radiales.

Après l'étude du profil de température de l'écoulement, nous allons présenter le profil de température des matériaux composant le SMTC et notamment le profil de température des surfaces des disques chaud et froid afin de vérifier l'homogénéité des températures. Nous présentons sur la figure 2.31 le profil de température dans les parties solide du SMTC, à savoir les disques chaud et froid, l'isolant en époxy et la coque isolante en laine de verre limitant le transfert thermique entre le SMTC et l'air ambiant. On remarque une bonne homogénéité des températures de l'ensemble disque chaud et de l'ensemble disque froid. Cependant on observe, malgré l'utilisation de l'époxy un important transfert par conduction thermique entre l'ensemble chauffant du SMTC et la partie basse du dispositif. Ce transfert par conduction ne semble, néanmoins, ne pas avoir d'influence sur le profil de température du bloc froid.

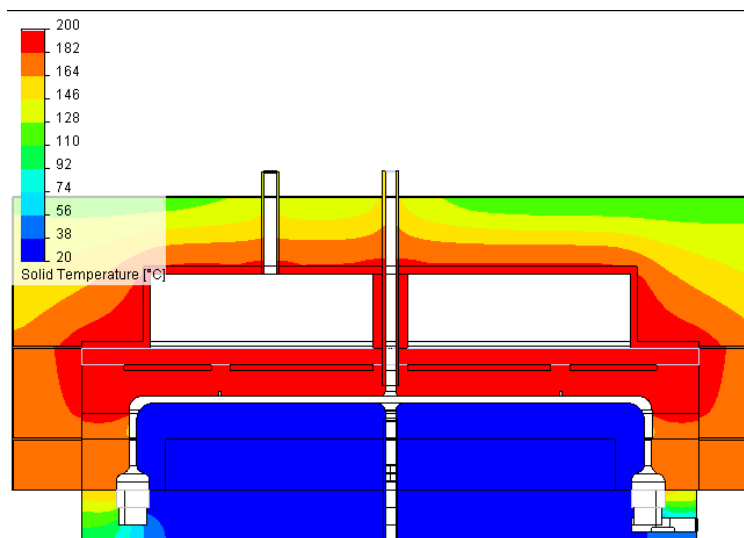


Figure 2.31 : Profil de température dans la partie solide du SMTC obtenu par le biais de l'étude numérique, vue en coupe.

La figure 2.32 représente le profil de température de la surface interne du disque froid. On observe un effet de dissymétrie sur la surface du disque, cependant son amplitude est très faible et

reste inférieure à 1°C. Au vue des faibles écarts de températures observés, on peut considérer le profil comme homogène sur l'ensemble de la surface du disque froid, c'est-à-dire avant et après la fente d'injection de l'aérosol.

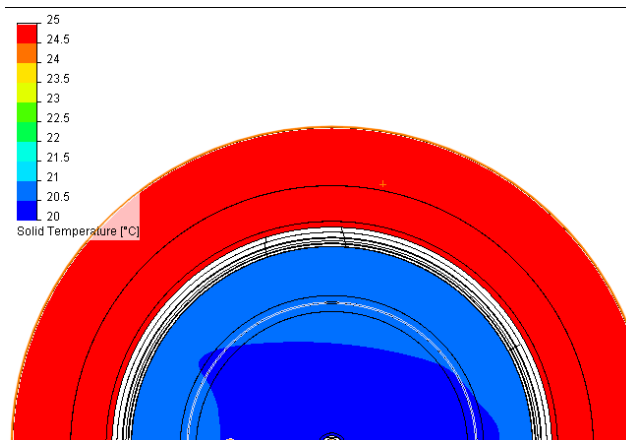


Figure 2.32 : Profil de température de la surface interne du bloc froid.

On représente sur la figure 2.33 le profil de température de la surface interne du disque chaud. Contrairement à la plaque froide, on observe des effets de dissymétrie important au niveau de la fente d'alimentation en aérosol, entre la zone interne et externe de la résistance électrique. L'écart observé est d'environ 10°C. Ce constat justifie la différence (figure 2.30) observée dans le profil de température de l'écoulement dans la zone de sélection des particules entre la partie interne et externe de la fente d'injection de l'aérosol.

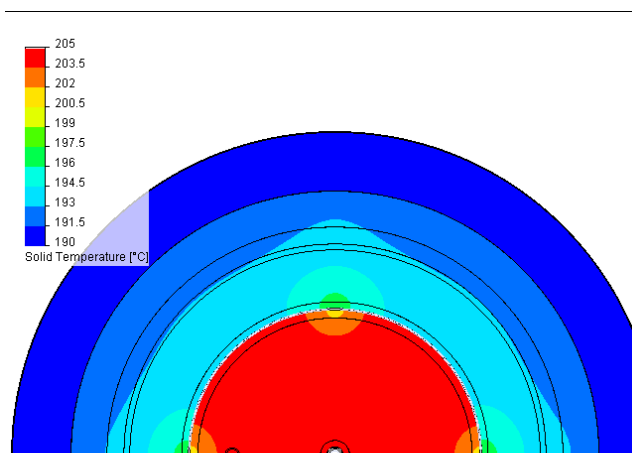


Figure 2.33 : Profil de température de la surface interne du bloc chaud.

2.5.4. Zone d'équilibre thermique dans le SMTC

La zone d'équilibre thermique ou de préchauffage située dans la partie externe du SMTC (avant la fente d'injection de l'aérosol) doit permettre au gradient de température d'être établi à l'injection de l'aérosol, ceci afin de ne pas perturber thermiquement la zone de sélection des particules. La figure 2.34 montre le profil de température dans cette zone de préchauffage d'un point de vue qualitatif. On ne remarque pas d'irrégularité dans le profil thermique mais on observe néanmoins l'influence de l'injection de l'aérosol sur le profil de température par une légère augmentation de la température locale près de la face interne du disque supérieur.

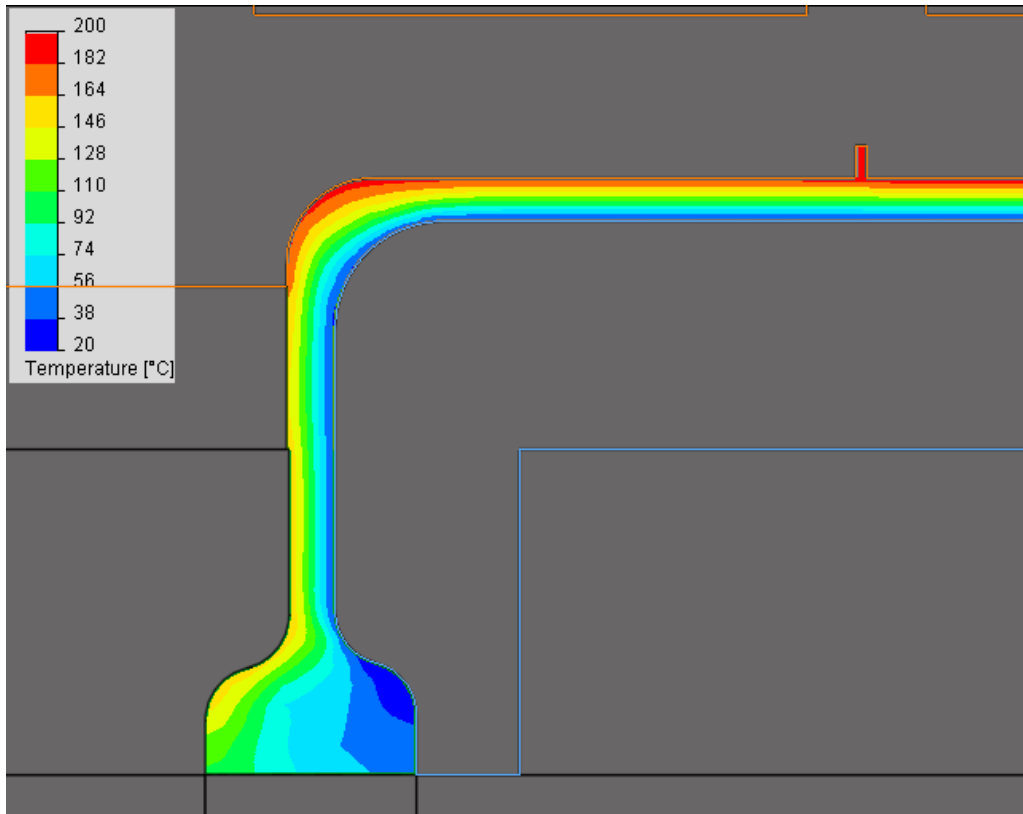


Figure 2.34 : Profil de température dans la zone d'équilibre thermique du SMTC

D'un point de vue quantitatif, nous présentons sur la figure 2.35 l'établissement du profil de température sur l'ensemble de la zone de sélection des particules à différentes hauteurs z de la plaque froide. Les résultats montrent que l'injection de l'aérosol à un rayon de 10 cm crée une faible perturbation dans le profil de température. En conséquence, le gradient de température (95 % de la valeur nominale) est établi pour une distance inférieure à 5 mm.

A l'extraction de l'aérosol, nous observons une perturbation du profil thermique plus importante apparaissant sur une plus grande distance (8 mm). Ce phénomène est la conséquence de l'extraction de l'aérosol qui n'est pas ponctuelle mais qui consiste en un tube de 3 mm de rayon. Néanmoins, cette perturbation n'a pas un grand impact sur nos mesures en raison du faible temps de résidence des particules dans cette zone. Ce faible temps de résidence est dû aux fortes vitesses présentes dans cette zone.

Nous observons également un écart entre les profils de température dans la zone de sélection et dans la zone de préchauffage. Cet écart n'est observable que vers la partie supérieure de l'écoulement (près de la plaque chaude) et est dû au décalage observé dans les températures de la plaque chaude entre la zone interne et externe de la fente d'injection.

L'inhomogénéité de température observée sur la surface de la plaque chaude est due au choix de la méthode de chauffe choisie dans la simulation. Nous avons, en effet, choisi d'imposer la même puissance (450 W) aux deux résistances électriques. Hors la résistance externe doit compenser les pertes thermiques dues aux échanges thermiques avec l'extérieur. Pour résoudre ce problème, la puissance apportée à la résistance externe doit être supérieure à celle de la résistance interne afin de compenser les pertes plus importantes qu'elle subit. Ce choix implique une double régulation sur l'organe de chauffe, et comme nous l'avons présenté au début de ce chapitre, c'est la solution qui a été choisie pour la conception du SMTC.

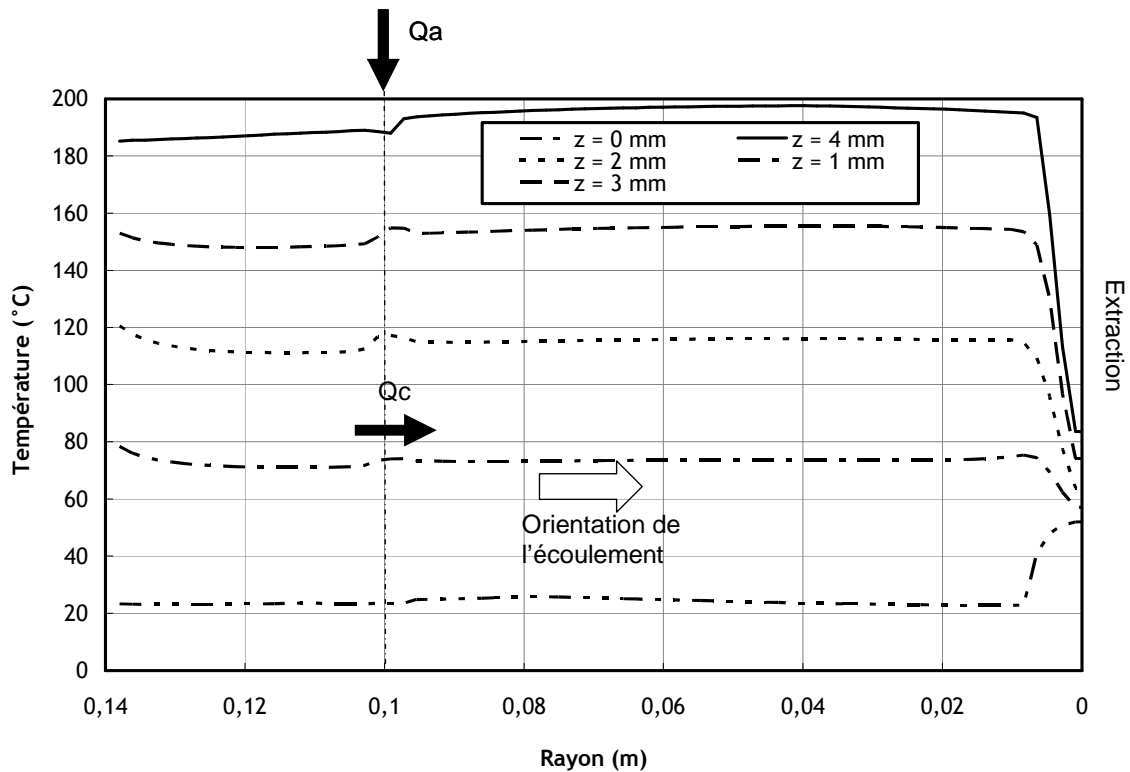


Figure 2.35 : Etablissement et stabilité du profil de température dans le SMTC en fonction de l'abscisse radiale et à différentes distances z de la plaque froide.

2.6. Contrôle du profil de température par le biais d'une caméra thermique.

En complément de l'étude thermique nous avons pu réaliser un contrôle du profil de température de la surface interne de la plaque avec une caméra thermique. La caméra thermique (Infratec VarioCAM high resolution) permet d'enregistrer les différents rayonnements infrarouges émis par la surface de la plaque chaude.

Nous avons réalisé des mesures de températures de surface par le biais de cette caméra pour des températures de consignes des résistances de 40°C à 150°C . Nous représentons sur les figures 2.36 et 2.37 les résultats de ces mesures pour une consigne de chauffe à 40°C (figure 2.36) et 150°C (figure 2.37). La valeur de la mesure réalisée par la caméra dépendant fortement de l'émissivité des matériaux, nous avons mis en place des rubans noirs sur la surface du disque afin de s'affranchir de l'incertitude liée aux valeurs de ces émissivités.

La mesure étant réalisée à l'air libre de la pièce et sans écoulement, les températures de surface sont soumises aux effets de convection naturelle. En conséquent les valeurs fournies par la caméra ne doivent pas être comparées à la valeur de consigne des résistances.

On remarque pour les deux exemples présentés une bonne homogénéité des températures de la surface interne du disque chaud avec le ruban noir. On observe cependant un écart de 10 % en température entre la face interne et externe du disque.

L'écart observé entre la face interne et externe du disque est justifiée par le fait que, lors de la réalisation de ces essais expérimentaux, les régulations thermiques des résistances interne et externe n'étaient pas indépendantes (une seule régulation pour les deux résistances électriques). Les déperditions thermique étant plus importantes sur les bords du disque, on observe donc un écart de température entre la surface interne et externe.

Ces résultats expérimentaux sont en accord avec les conclusions de l'étude thermique et justifient l'utilisation d'une double régulation pour compenser les pertes thermiques de la face externe du disque chaud.

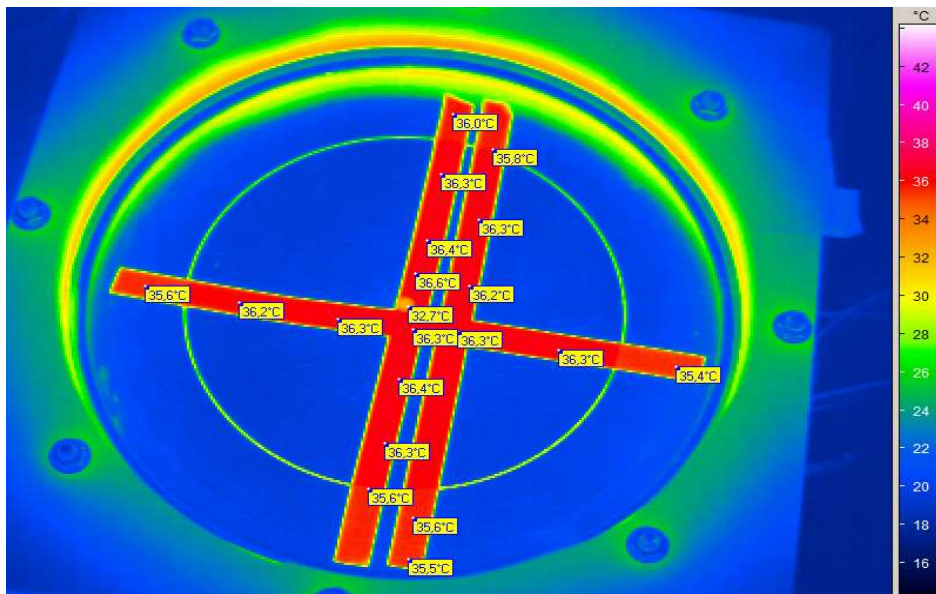


Figure 2.36 : Mesure des températures enregistrées par la caméra thermique sur la surface de rubans noirs positionnés sur la face interne de la plaque chaude du SMTc (consigne de chauffe à 40 °C)

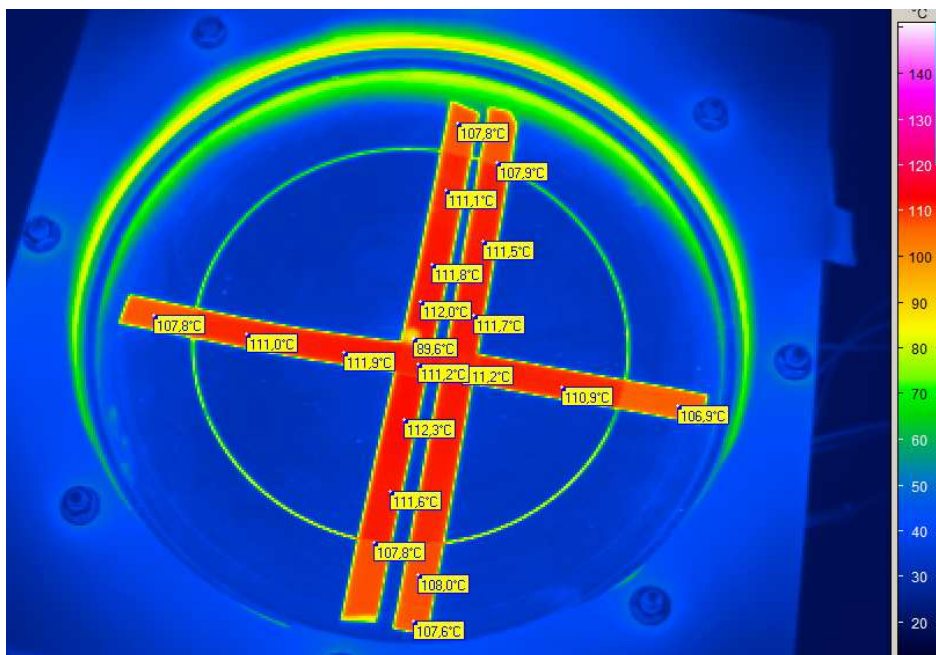


Figure 2.37 : Mesure des températures enregistrées par la caméra thermique sur la surface de rubans noirs positionnés sur la face interne de la plaque chaude du SMTc (consigne de chauffe à 150 °C)

2.7. Conclusion

Nous avons dans ce chapitre présenté la conception d'un nouveau dispositif pour la mesure de la vitesse de thermophorèse, le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire (SMTc). Ce dispositif s'appuie sur le concept du *Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire* (SMEC) développé par Pourprix (1989) et Pourprix (1995). Dans le SMTc, un aérosol est injecté avec un écoulement radial entre deux disques (un disque chauffé et un disque refroidi) distant de 4 mm où un gradient de température est établi. En fonction du gradient de température et surtout des débits d'aérosol et

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

d'air filtré injectés, une vitesse de thermophorèse effective est attribuée aux particules sélectionnées.

La réalisation du dispositif a posé plusieurs difficultés, notamment dans le choix des matériaux et solutions techniques pour chauffer et refroidir le dispositif. Pour assurer une bonne homogénéité de température, le choix s'est porté sur une double résistance électrique pour la plaque chaude et un circuit de refroidissement à eau fermée pour la plaque froide. La sélection des matériaux s'est orientée vers de l'aluminium pour sa faible dilatation thermique et l'Epoxy pour ses qualités d'isolant thermique, permettant ainsi de maintenir une distance entre les plaques constante et donc un gradient de température constant.

Nous avons présenté le développement théorique de la fonction de transfert du SMTC permettant de relier la vitesse de thermophorèse des particules sélectionnées aux conditions expérimentales. La théorie de la fonction de transfert, normalement utilisée pour des dispositifs électrique, a du être modifiée afin de s'appliquer à un appareil thermique avec les contraintes qu'un profil de température peut avoir sur les paramètres physiques de l'aérosol ou de l'air utilisés et des conséquences sur le phénomène de thermophorèse.

Nous avons, ensuite, réalisé une étude thermique numérique afin de dimensionner l'instrument et de s'assurer de l'homogénéité thermique et de la vitesse dans la zone de sélection des particules. Cette étude a notamment permis de poser les limites thermiques et de vitesses d'écoulement de l'instrument.

3. QUALIFICATION DU SMTC ET TRAITEMENT DES DONNEES

Nous avons présenté, dans le chapitre précédent, la conception d'un nouveau dispositif permettant de déterminer directement la vitesse de thermophorèse de particules monodispersées.

Dans ce chapitre, nous allons faire une description du dispositif expérimental utilisé d'une part pour la qualification du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire et, d'autre part, pour l'étude du comportement thermophorétique des particules de suie. Nous présenterons tout d'abord les moyens de production des particules sphériques et non-sphériques et l'instrumentation utilisée pour caractériser les particules. Nous présenterons ensuite le dispositif utilisé pour effectuer des prélèvements et des analyses d'images des particules par microscopie électronique (MET).

Nous exposerons par la suite la qualification en mode électrique du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire afin de valider les côtes géométrique du dispositif. Nous présenterons le protocole expérimental d'établissement de la fonction de transfert thermique du SMTC et son interprétation afin d'en déduire une vitesse effective de thermophorèse des particules sélectionnées.

3.1. Montage expérimental : principe général

3.1.1. Principe général

Afin d'étudier le comportement thermophorétique de particules sphériques et non-sphériques, un banc expérimental comprenant le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire a été spécialement conçu et caractérisé. Ce banc, présenté sur la figure 3.1, est composé de quatre éléments essentiels qui ont pour objectif de :

- générer des particules de morphologies et de tailles différentes,
- sélectionner une taille de particules pour rendre l'aérosol monodispersé,
- analyser les particules avec le SMTC en fonction de leur comportement thermophorétique,
- détecter les particules par comptage en sortie du SMTC.

Pour atteindre ces objectifs, le banc doit être composé de plusieurs types de générateurs dont notamment un générateur de billes Latex pour la génération de particules sphériques et d'un générateur d'agrégat de suie de combustion. Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire (SMTC) doit être capable de mesurer la vitesse de thermophorèse des billes Latex et des agrégats. Pour cela, les agrégats doivent être caractérisés en amont du SMTC en fonction de leur diamètre équivalents en mobilité électrique, de la taille des particules primaires ou encore de la dimension fractale. Cette caractérisation des agrégats permettra d'une part de comparer la vitesse de thermophorèse des billes de latex et des agrégats pour une même taille équivalente de particule, d'autre part de corrélérer la morphologie des agrégats avec leur vitesse de thermophorèse.

Nous allons présenter, à l'exception du SMTC, les différents éléments composant le banc expérimental de mesure de la vitesse effective de thermophorèse de particules sphériques et d'agrégats.

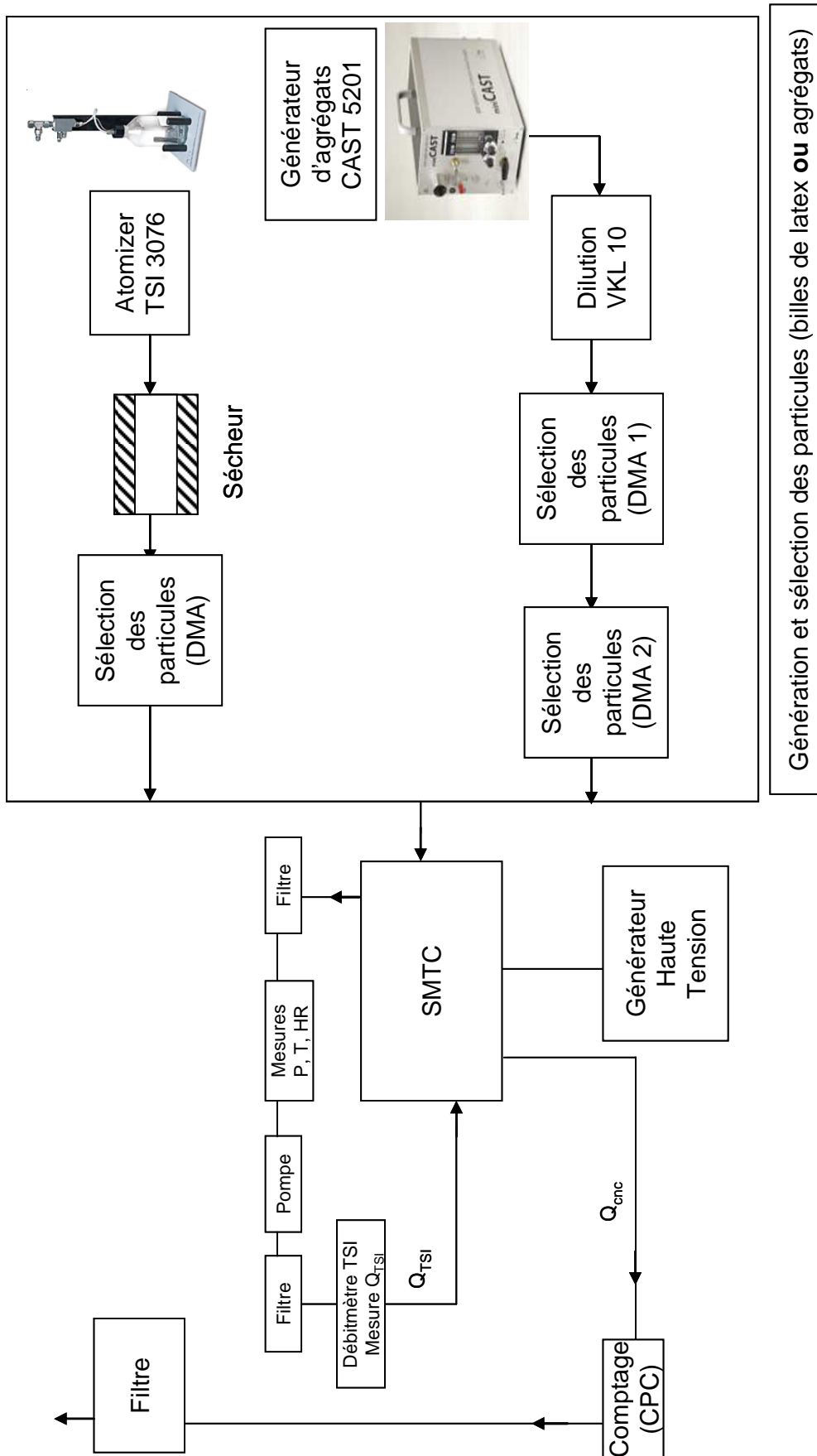


Figure 3.1 : Schéma descriptif du banc expérimental de qualification du SMTC et de détermination de la vitesse effective de thermophorèse de particules sphériques et non-sphériques.

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

3.1.2. Le générateur de billes de latex

Le générateur de particules sphériques utilisé est un atomiseur de TSI 3076 qui est présenté en Annexe C.

La figure 3.2 représente un exemple de distribution granulométrique obtenue pour une solution de billes de latex de 100 nm. La solution est obtenue en diluant 3 gouttes de PSL (concentration 10 %) dans 500 ml d'eau distillée. Dans le cadre de nos essais, cinq tailles de billes de latex seront traitées : 64, 100, 200, 430 et 500 nm. Comme on peut l'observer sur la figure 3.2, les solutions de billes de latex utilisées dans l'atomiseur comportent une certaine quantité d'impureté dont les tailles sont principalement inférieures à 80 nm.

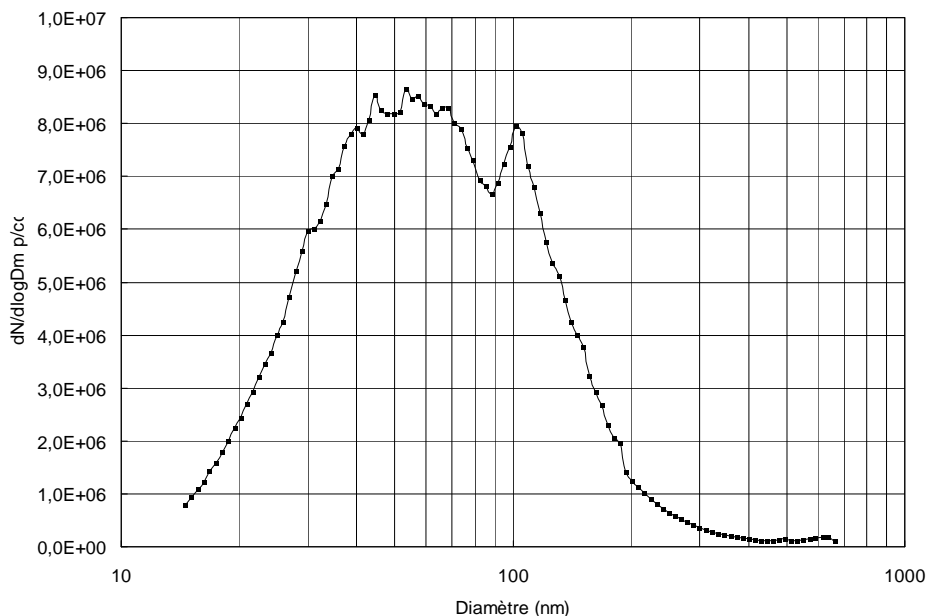


Figure 3.2 : Evolution de la distribution en nombre pour une génération de billes de latex de 100 nm par le biais du générateur TSI 30776

Nous représentons sur la figure 3.3, l'évolution de la concentration en nombre de billes de latex de 100 nm produit par l'atomiseur et sélectionnées par un DMA en fonction du temps. On constate, sur une durée de 40 min une très bonne stabilité de la génération de billes de latex par le générateur TSI 3076, avec une valeur moyenne de la concentration égale à 8660 particules/cm³, un écart-type de 270 particules par cm³ et un coefficient de variation égal à 3,1 %. Cette stabilité est, comme on le montrera un peu plus tard dans le chapitre, importante afin d'établir une fonction de transfert du SMTc.

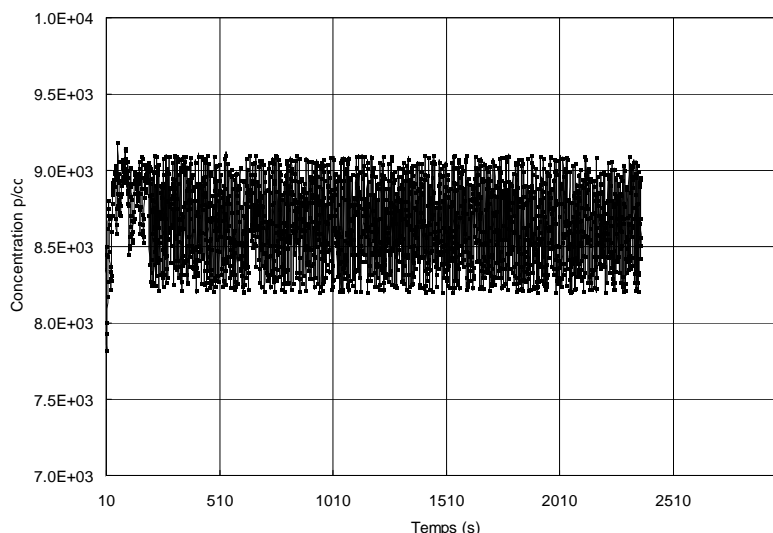


Figure 3.3 : Evolution de la concentration en nombre de billes de latex produit par l'atomiseur et sélectionnées par un DMA en fonction du temps, les mesures sont réalisées avec un CPC 3022A-TSI.

3.1.3. Le générateur d'agrégats

3.1.3.1. Description du générateur miniCAST 5201

Le miniCAST JING 5201 est un générateur d'agrégats créé par JING Ltd. Ce générateur est réputé pour sa robustesse, sa répétabilité et sa stabilité dans le temps et a vocation à servir d'instrument de calibration et d'outil de recherche dans le domaine des aérosols.

Le générateur miniCAST permet la production de particules nanostructurées de suie grâce à une flamme de diffusion de propane. Une vue schématique du générateur est proposée sur la figure 3.4.

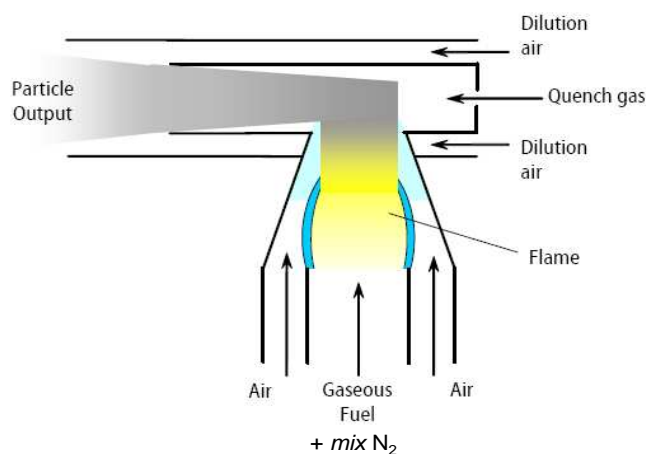


Figure 3.4 : Schéma de la chambre du générateur miniCAST

Le générateur CAST (*Combustion Aerosol Standard*) est basé sur le principe d'une flamme de diffusion de propane. Un mélange propane/azote est injecté dans la chambre de combustion et va entrer en contact avec l'air introduit séparément. Une flamme de diffusion produit un nombre important de suies à l'intérieur de la zone de combustion. Les particules sont relâchées de la flamme grâce à un arrêt brutal de la combustion par un refroidissement rapide créé par un gaz inerte (« *quench gas* », de l'azote dans notre cas). Ce refroidissement rapide par de l'azote permet d'une part, une interruption des réactions chimiques au sein de la flamme, d'autre part, de stopper la formation des suies à un état donné (correspondant au moment où le procédé de combustion est arrêté).

La position de la zone d'extinction a une influence sur la taille des particules produites. Ainsi, une zone d'extinction placée proche de la base de la flamme produira des particules plus petites qu'une zone d'extinction placée en bout de flamme. Les particules formées sont ensuite diluées grâce à un débit d'air.

Le miniCAST utilisé pour notre étude ne permet pas de faire varier mécaniquement la hauteur de la zone d'extinction. Ainsi la chambre de combustion a une géométrie fixe. La variation de la granulométrie des particules est liée à la variation de la hauteur de la flamme obtenue grâce aux débits d'air, de propane et d'azote introduit dans le système qui sont donc les seuls paramètres à faire varier dans le générateur. Les réglages du générateur miniCAST 5201 reposent donc sur les débits de gaz injectés, à savoir :

- ↺ le débit de propane (ml/min),
- ↺ le débit d'azote de dilution du propane (*mix* N₂, ml/min),
- ↺ le débit d'air d'oxydation (l/min),
- ↺ le débit d'azote d'extinction de flamme (*quench gas*, l/min),
- ↺ le débit d'air de dilution des aérosols produits (l/min).

3.1.3.2. Influence des conditions aérauliques

Une qualification du générateur d'agrégats a été réalisée avant le début des essais avec le SMTC. Au court de cette qualification, les débits de « *quench gas* » et d'air de dilution ont été gardés constants et seul l'influence des débits de propane, d'air d'oxydation et d'azote de dilution (*mix* N₂) sur les propriétés granulométriques des aérosols formés ont été étudiés.

Des travaux ont déjà montré l'influence des débits d'air d'oxydation et de propane sur la taille des particules (Jing, 2002). Cependant, les débits d'air et de propane n'influencent pas seulement la taille des particules produites. Ainsi Ferge *et al.* (2006) ont utilisé le rapport air/propane ou richesse du mélange afin de caractériser les particules produites par le générateur. Il en résulte que les particules vont avoir une composition physico-chimique différente en fonction de la richesse. Ainsi, le ratio carbone organique (OC pour *Organic Carbon*) sur carbone élémentaire (EC pour *Elemental Carbon*) composant les particules va évoluer avec la richesse du mélange. Les particules qui contiennent du carbone organique contiennent majoritairement du carbone mais également de l'hydrogène, de l'azote ou de l'oxygène. Les particules composées principalement de carbone élémentaire ont une structure proche du graphite. Cette variation du ratio EC/OC peut influencer le comportement thermophorétique des agrégats, ce dernier étant dépendant de la nature physico-chimique de la particule, notamment de la conductivité thermique.

La variation du débit d'azote de dilution n'influence pas la richesse du mélange contrairement aux débits de propane et d'air d'oxydation, ce qui nous permet d'en déduire que la composition en EC/OC des particules ne doit pas dépendre du débit d'azote de dilution. Pour cette raison, nous ne présenterons que les résultats de qualification du générateur CAST issus de la variation du débit d'azote. Nous présentons sur la figure 3.5 les distributions granulométriques pour cinq débits d'azote de dilution (*mix* N₂) et des débits de propane et d'air d'oxydation fixés à 50 ml/min et 1,2 l/min.

Avec une géométrie de la chambre constante, le débit d'azote de dilution va influencer le temps de séjour des particules au sein de la flamme et donc réduire le temps de coagulation. Ceci explique la diminution en taille des particules produites avec l'augmentation du débit d'azote de dilution.

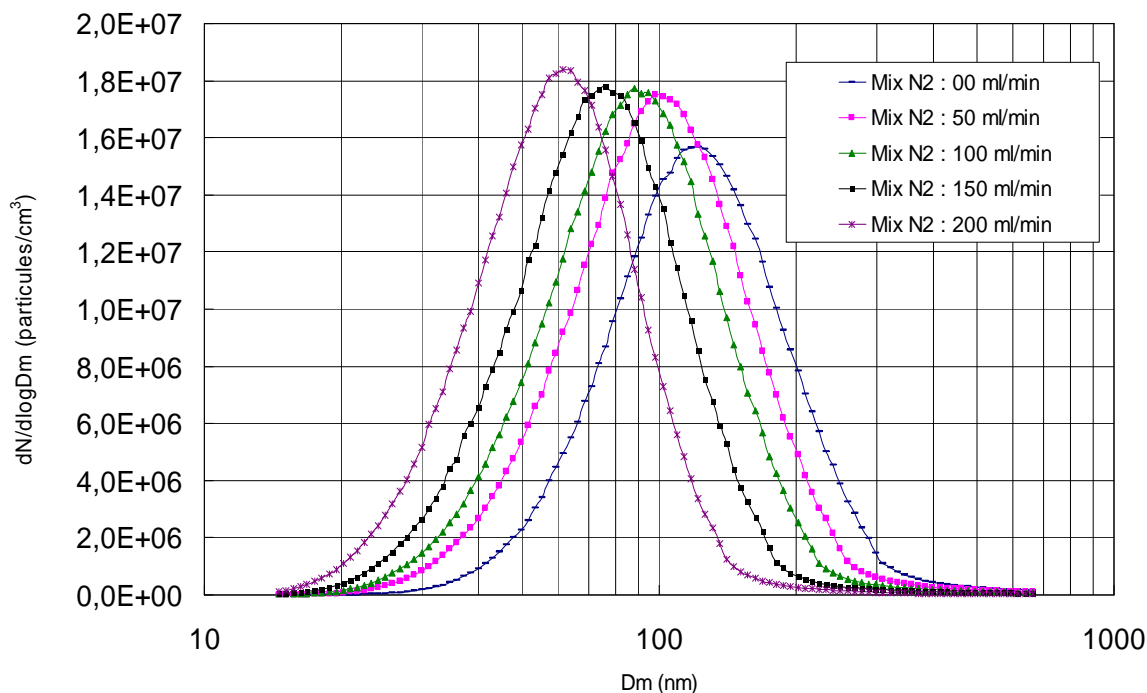


Figure 3.5 : Evolution de la distribution granulométrique en nombre avec le débit de *mix N₂* et des débits de propane à 50 ml/min, d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de *quench gas* d'azote à 7,5 l/min et d'air de dilution à 20 l/min.

Le tableau 3 présente l'évolution du mode de la distribution granulométrique pour les différents débits d'azote de dilution (*mix N₂*) présentés sur la figure 3.5. On constate que l'augmentation du débit d'azote de dilution (*mix N₂*) tend à décaler la distribution granulométrique vers la gauche. Il en résulte une diminution du diamètre modal avec l'augmentation du débit d'azote de dilution.

Tableau 3.1 : Evolution du mode pour différents débits d'azote, avec l'écart-type géométrique associé.

<i>Mix N₂</i> (ml/min)	0	50	100	150	200
mode (nm)	119,4	100,9	90,9	76,4	60,9
écart-type géométrique	1,6	1,6	1,6	1,6	1,5

Des mesures du ratio EC/OC des points de fonctionnement du générateur CAST présentées dans le tableau 3.1 sont effectuées. Cette analyse a été faite à l'aide d'un analyseur de la marque *Sunset Laboratory*. Cet analyseur, semblable à un four, permet de chauffer les échantillons de suies afin de séparer les différents types de carbone (EC ou OC). Le carbone organique et le carbone élémentaire sont ainsi volatilisés et analysés afin de déterminer la quantité de chaque type composant l'échantillon. Les résultats de cette analyse ont montré que les agrégats produits sont principalement composés de carbone élémentaire (> 85 %) ce qui permet d'éviter un éventuel problème de dégradation de la partie organique de la particule lors de sa montée en température dans le SMTC.

Afin d'éviter toute influence du système de production sur la morphologie ou sur la composition physico-chimique des agrégats, l'ensemble des expériences avec le SMTC pour l'étude du comportement thermophorétique des particules de suies ont été réalisés avec un seul point de fonctionnement du générateur CAST. Ce point de fonctionnement correspond aux réglages des débits suivant :

- débit de propane = 50 ml/min,
- débit d'azote de dilution du propane (*mix N₂*) = 50 ml/min),
- débit d'air d'oxydation = 1,2 l/min,

- débit d'azote d'extinction de flamme (*quench gas*) = 7,5 l/min),
- débit d'air de dilution des aérosols produits = 20 l/min.

Ce point de fonctionnement nous permet d'avoir une distribution granulométrique en sortie du générateur avec un mode à 100 nm et un écart-type géométrique de 1,6 ce qui permet de sélectionner des agrégats de tailles (diamètre de mobilité électrique) compris entre 20 nm et 600 nm.

Cependant, les concentrations pour des particules de suies de tailles supérieures à 300 nm sont très faibles. Comme expliqué dans la partie 3.1.1, les particules sont sélectionnées en sortie du générateur afin de rendre l'aérosol monodispersé. La faible concentration des agrégats de diamètre supérieurs à 300 nm cumulée aux pertes dans le classificateur électrostatique (présenté dans la section 3.1.6.3) rend difficile l'étude du comportement thermophorétique de cette gamme de taille. Pour résoudre ce problème, un volume tampon de 4 l a été ajouté en sortie du générateur afin de permettre une agglomération des agrégats et ainsi augmenter leurs tailles. Le débit volumique dans ce volume tampon est de 0,3 l/min.

Nous représentons sur la figure 3.6 la distribution granulométrique réalisée en sortie du volume tampon avec un débit de propane à 50 ml/min, d'air d'oxydation à 1,2 l/min, d'azote de dilution du propane (*mix N₂*) à 50 ml/min. On remarque que le volume tampon a permis de déplacer le mode de la distribution granulométrique en nombre de 100 nm à 170 nm. Le volume tampon a permis également d'obtenir des concentrations plus élevées pour des agrégats de diamètre supérieurs à 300 nm.

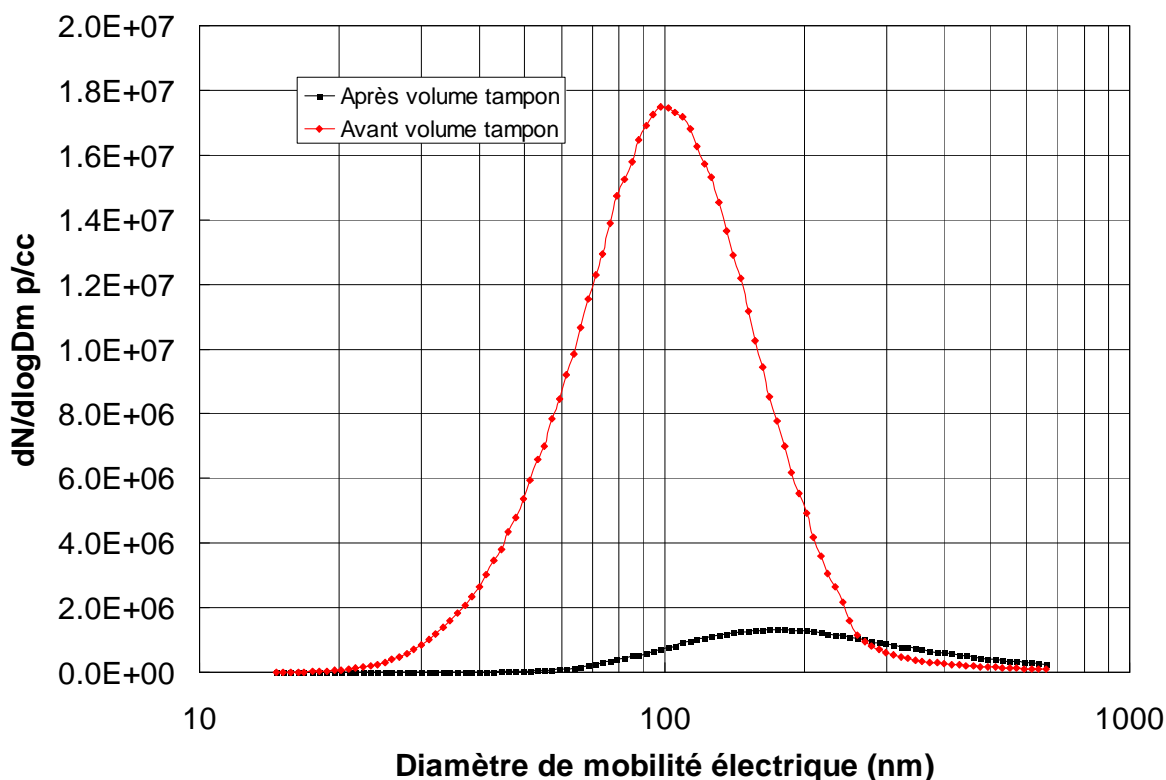


Figure 3.6 : Evolution de la distribution granulométrique en nombre avec des débits de propane à 50 ml/min, d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de débit d'azote de dilution du propane (*mix N₂*) à 50 ml/min, avant et après un volume tampon de 4 l en sortie du générateur.

3.1.3.3. Stabilité de la génération

La figure 3.7 présente l'évolution de la concentration en nombre de particules de 50 nm sélectionnées par un classificateur électrique pour différents débits d'azote de dilution (0 ml/min, 100 ml/min et 200 ml/min).

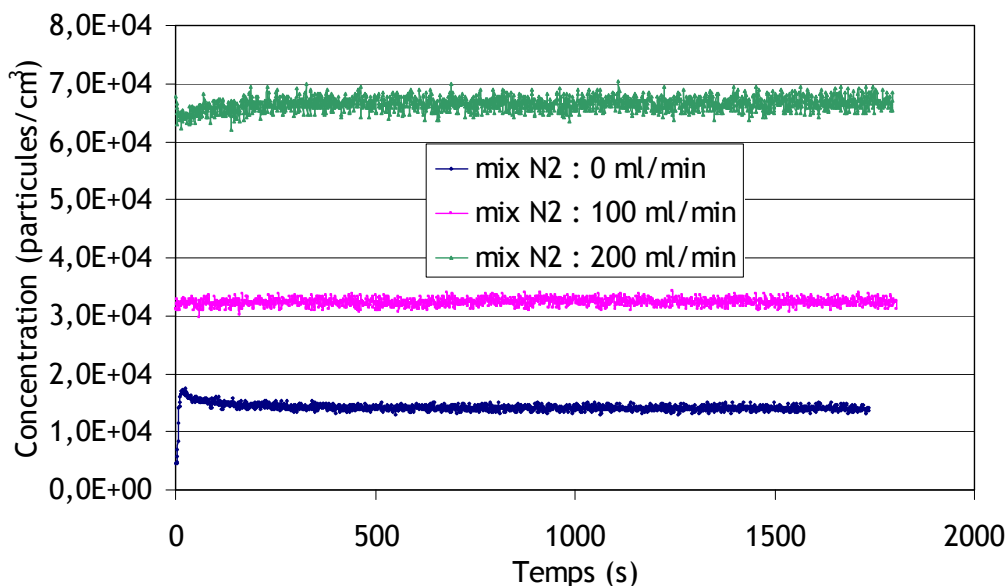


Figure 3.7 : Evolution de la concentration en nombre de particules sélectionnées avec un diamètre égal à 50 nm en fonction du temps (30 min) pour des débits de *mix N₂* de 0, 100 ml/min et 200 ml/min, de propane à 50 ml/min et d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de *quench gas* d'azote à 7,5 l/min et d'air de dilution à 20 l/min

Le tableau 3.2 présente la concentration en nombre moyenne (sur 30 min), avec l'écart-type associé, de particules de 50 nm sélectionnées pour des débits d'azote de dilution de 0 ml/min, 100 ml/min et 200 ml/min.

Tableau 3.2 : Concentration moyenne en nombre et écart-type associé pour des particules de diamètre égal à 50 nm pour des débits de *mix N₂* de 0, 100 et 200 ml/min, de propane à 50 ml/min et d'air d'oxydation à 1,2 l/min, de *quench gas* d'azote à 7,5 l/min et d'air de dilution à 20 l/min.

Mix N ₂ (ml/min)	0	100	200
concentration (particules/cm ³)	1.42E+04	3.23E+04	6.65E+04
écart-type (particules/cm ³)	750.00	620.00	1152
coefficient de variation (CV)	5,3 %	1,9 %	1,7 %

Qu'il s'agisse de la concentration totale en nombre ou de la concentration en nombre de particules d'un diamètre sélectionné par le DMA, les variations sont assez faibles : la grande stabilité du générateur est confirmée lors d'un fonctionnement continu.

3.1.4. Analyse des agrégats par microscopie électronique

3.1.4.1. Dispositif de prélèvement utilisé dans cette étude

En sortie du générateur, les agrégats sont prélevés sur une grille de microscopie électronique à l'aide d'un dispositif muni d'une sonde à thermophorèse. Le schéma de principe de ce dispositif est présenté sur la figure 3.8 et est composé de trois éléments principaux :

- un tube de prélèvement entouré d'un manteau chauffant,
- un doigt maintenu à basse température à l'aide d'un module à effet Peltier et à l'extrémité duquel les particules sont collectées sur une grille de microscopie électronique,
- une unité de contrôle comportant pompes et filtres.

L'aérosol est prélevé en sortie du générateur et est échantillonné dans un tube cylindrique (avec un débit de 3,1 l/min), maintenu à plus de 100°C par un manteau chauffant et où se trouve un doigt refroidi ayant à son extrémité une grille de microscopie électronique. Les particules vont donc se déplacer vers le doigt froid et se déposer sur la grille par effet

thermophorétique. Cette grille est ensuite analysée à l'aide d'un Microscope Electronique en Transmission (MET) pour effectuer des photographies des particules prélevées.

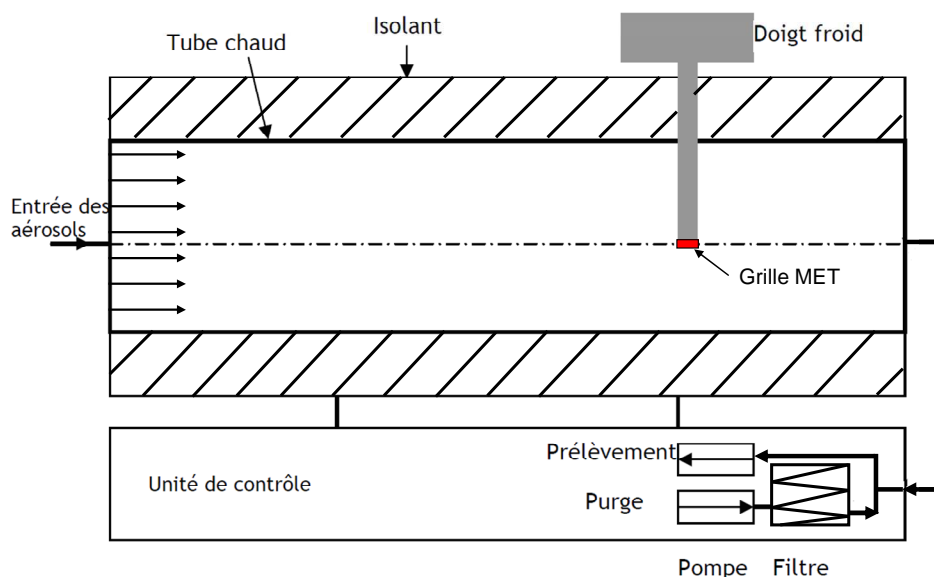


Figure 3.8 : Schéma de principe du dispositif de prélèvement des agrégats sur grille de microscopie électronique.

3.1.4.2. Traitement des clichés de microscopie électronique

Le but de l'analyse des clichés obtenus par Microscopie Electronique par Transmission (MET) est de déterminer 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 180) et les clichés sont ensuite digitalisés afin d'isoler les agrégats du fond uniforme des grilles de dépôt. Deux niveaux de couleurs sont alors disponibles, le noir correspondant à l'agrégat et le blanc à la grille. La figure 3.9 est un exemple de cliché d'agrégat produit par le générateur CAST.

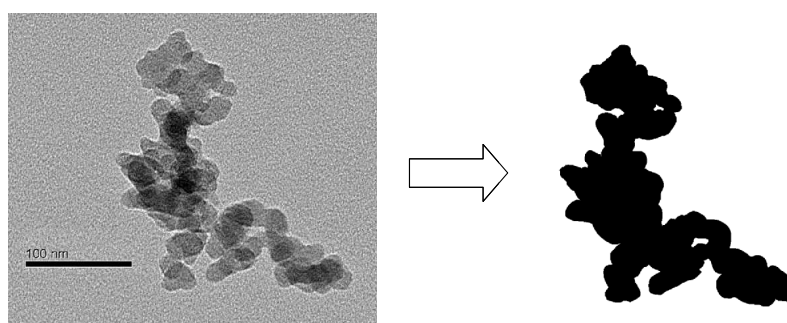


Figure 3.9 : Exemple de cliché brut et binarisé d'un agrégat issu du générateur CAST.

Les images sont ensuite analysées à l'aide d'un logiciel développé avec Matlab.

3.1.4.3. Détermination de D_{pp} , N_{pp} et D_g

Comme indiqué dans le premier chapitre la morphologie des agrégats de suie peut être décrite à l'aide d'une relation fractale (relation 1.48). Celle-ci permet de calculer le nombre de particules primaires N_{pp} en fonction du rapport du diamètre de giration D_g sur le diamètre des particules primaires D_{pp} . ce dernier est déterminé directement sur les clichés en considérant que les particules primaires ont toutes le même diamètre dans un agrégat. La figure 3.10 présente la distribution de particules primaires obtenue à partir de la mesure de 180 particules primaires environ. Un ajustement de type Log-normal a été appliqué sur cette distribution afin d'en déduire

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

un diamètre de particule primaire médian avec un écart-type géométrique associé. Cet ajustement nous donne une valeur médiane du diamètre des particules primaires égale à 19,7 nm avec un écart-type géométrique de 1,3.

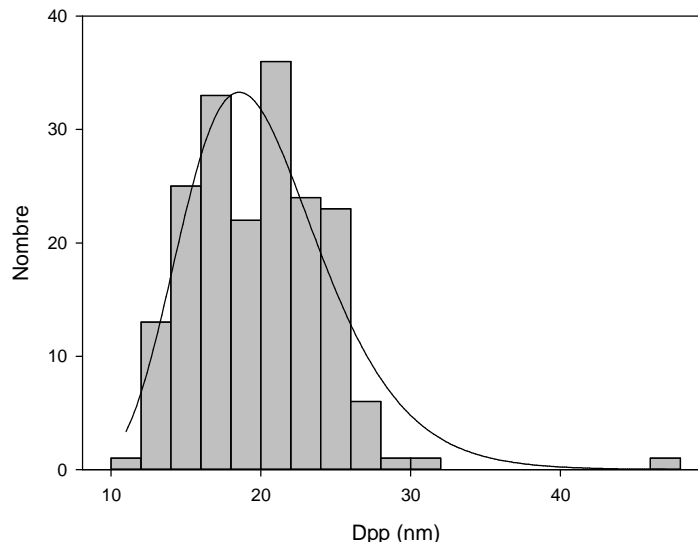


Figure 3.10 : Distribution en nombre des particules primaires pour l'échantillon d'agrégats prélevé en sortie du générateur CAST.

La détermination du nombre de particules primaires 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 à partir de clichés de transmission à deux dimensions et on utilise une relation empirique afin de lier ces informations :

$$N_{pp} = k_a \left(\frac{S_a}{S_p} \right)^\alpha, \quad (3.1)$$

où S_a et S_p représentent les aires de projection de l'agrégat et d'une particule primaire (m^2) et α et k_a sont des constantes. Cette relation s'appuie sur des travaux expérimentaux et numériques (Megaridis et Dobbins, 1990 ; Koçlu *et al.*, 1995a et b, Sorensen et Feke, 1996, Brasil *et al.*, 1999) qui ont permis la détermination des constantes. Nous avons ainsi pour valeurs de ces deux constantes : $\alpha = 1,095$ et $k_a = 1,155$. 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 diamètre 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 noir sur l'image) ou 1 (présence de noir). La surface de projection de l'agrégat correspond donc à la somme des valeurs des pixels composant le cliché :

$$S_a = \sum_{x,y} P_{res}(x,y). \quad (3.2)$$

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

$$\begin{pmatrix} x_B \\ y_B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{S_a} \sum_{x,y} x \cdot P_{res}(x,y) \\ \frac{1}{S_a} \sum_{x,y} y \cdot P_{res}(x,y) \end{pmatrix}. \quad (3.3)$$

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 calculer sa valeur $R_{g,2D}$ à partir de clichés à deux dimensions :

$$R_{g,2D}^2 = \frac{1}{S_a} \sum P_{res}(x,y) [(x-x_B)^2 + (y-y_B)^2]. \quad (3.4)$$

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

$$R_{g,3D} = \left(\frac{D_f + 2\alpha}{D_f + 2} \right)^{0,5} \cdot R_{g,2D}. \quad (3.5)$$

3.1.4.4. Détermination de D_f , et K_f

Pour chaque agrégat, le nombre de particules primaires et le rayon de giration $R_{g,3D}$ sont connus, on peut alors tracer la courbe $\ln(N_{pp}) = f(\ln(R_g/R_{pp}))$. La figure 3.11 représente le résultat obtenu pour les particules de suie analysées en sortie du générateur.

La bonne corrélation et la relation linéaire observées sur cette figure confirment la validité de la procédure permettant de déterminer le nombre de particules primaires et le rayon de giration :

$$N_{pp} = K_f \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f}. \quad (3.6)$$

La détermination de la dimension fractale et du préfacteur est alors directe à partir des résultats tels que ceux illustrés sur la figure 3.11. 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 3.11 une valeur pour la dimension fractale $D_f = 1,69$ et une valeur de $K_f = 2,8$ pour le préfacteur.

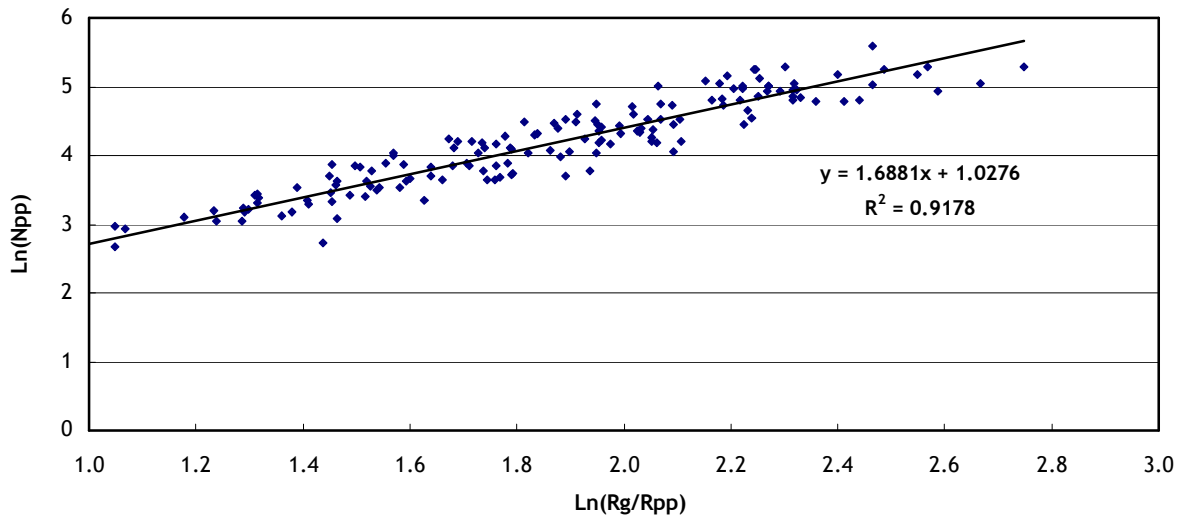


Figure 3.11 : Détermination de la loi fractale et de la morphologie de particules de suie issues du générateur CAST.

3.1.4.5. 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 $\ln(N_{pp})$ et $\ln(R_g/R_{pp})$. 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 :

$$s^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (\ln(N_{pp})_i - \ln(N_{pp} \text{ fit})_i)^2}{n-2}, \quad (3.7)$$

où n représente le nombre de données composant la série et N_{ppfit} la valeur issue de la régression linéaire pour la donnée i de la série.

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

$$\text{incertitude type sur } D_f = \frac{s^2}{\sum_{i=1}^n \left(\text{Ln}(R_g / R_{pp})_i - \overline{\text{Ln}(R_g / R_{pp})} \right)^2}, \quad (3.8)$$

et

$$\text{incertitude type sur } \text{Ln}(K_f) = s^2 \cdot \left(\frac{1}{n} + \frac{\overline{\text{Ln}(R_g / R_{pp})}^2}{\sum_{i=1}^n \left(\text{Ln}(R_g / R_{pp})_i - \overline{\text{Ln}(R_g / R_{pp})} \right)^2} \right). \quad (3.9)$$

Les incertitudes types ($k=1$) sont pour la dimension fractale inférieures à 9 % tandis que pour le préfacteur cette incertitude peut atteindre 25 %.

3.1.4.6. Relation entre D_m , D_g et N_{pp}

Comme nous l'avons présenté, le banc expérimental permet une sélection des agrégats avec un DMA afin d'avoir un aérosol monodispersé. Cette sélection des agrégats attribut à ceux-ci un diamètre de mobilité électrique. Il nous faut donc faire le lien entre les analyses morphologique réalisées et présentées précédemment et ce diamètre de mobilité électrique.

Pour cela, on se propose de présenter deux méthodes permettant de relier le diamètre de mobilité électrique de l'agrégat à sa morphologie fractale, et tout particulièrement au nombre de particules primaires.

La première consiste à comparer les distributions granulométriques obtenues par le SMPS pour les diamètres de mobilité électrique et par l'analyse des clichés MET pour les diamètres de giration.

En effet, comme nous allons le montrer, ces distributions sont parfaitement modélisables par des lois log normales de la forme :

$$\frac{dN_{agg}}{d\text{Ln}(D)} = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \text{Ln}(\sigma_{geo})} \exp \left(-0,5 \left(\frac{\text{Ln} \left(\frac{D}{D_{geo}} \right)}{\text{Ln}(\sigma_{geo})} \right)^2 \right). \quad (3.10)$$

L'intégrale de cette fonction $\int_0^D dN_{agg}$ représente la proportion numérique de particules ayant un diamètre inférieur ou égal à D , ce qui donne le résultat suivant :

$$P(< D) = \int_0^D dN_{agg} = \frac{1}{2} \text{erfc} \left(\frac{\text{Ln} \left(\frac{D}{D_{geo}} \right)}{\sqrt{2} \cdot \text{Ln}(\sigma_{geo})} \right), \quad (3.11)$$

avec erfc la fonction d'erreur complémentaire.

Les diamètres de giration comme les diamètres de mobilité électrique ne font que croître avec le nombre de particules primaires. On peut donc supposer que la proportion de particules ayant un nombre de particules primaires inférieur ou égal à N_{pp} est délimités par des diamètres de giration et

de mobilité électrique définis par $P(< D_g) = P(< D_m)$. Ainsi, si l'on admet que les représentations des densités de probabilités en diamètre de giration et en diamètre de mobilité électrique respectent toutes deux des lois lognormales alors on obtient :

$$\frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left(-\frac{\operatorname{Ln} \left(\frac{D_g}{D_{g,geo}} \right)}{\sqrt{2} \cdot \operatorname{Ln}(\sigma_{g,geo})} \right) = \frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left(-\frac{\operatorname{Ln} \left(\frac{D_m}{D_{m,geo}} \right)}{\sqrt{2} \cdot \operatorname{Ln}(\sigma_{m,geo})} \right), \quad (3.12)$$

où D_m et D_g sont respectivement les diamètres de giration et de mobilité électrique et $\sigma_{m,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$ les écart-types géométriques associés.

Ce qui mène à :

$$\left(\frac{D_g}{D_{g,geo}} \right)^{\frac{1}{\operatorname{Ln}(\sigma_{g,geo})}} = \left(\frac{D_m}{D_{m,geo}} \right)^{\frac{1}{\operatorname{Ln}(\sigma_{m,geo})}}. \quad (3.13)$$

Rogak *et al.* (1993) ont introduit la notion de fonction β qui relie le diamètre de giration (caractéristique de la morphologie de l'agrégat) et le diamètre de mobilité (caractéristique de la mobilité électrique de l'agrégat dans l'air), soit :

$$D_g = \beta \cdot D_m. \quad (3.14)$$

On peut déduire de la relation 3.13 cette fonction β :

$$\beta = \left(\frac{D_{g,geo}}{D_{m,geo}} \right)^{\chi} \cdot D_g^{(1-\chi)} \quad \text{avec} \quad \chi = \frac{\operatorname{Ln}(\sigma_{m,geo})}{\operatorname{Ln}(\sigma_{g,geo})}, \quad (3.15)$$

ou plus simplement, on peut exprimer directement le diamètre de giration de l'agrégat en fonction du diamètre de mobilité de celui-ci :

$$D_g = D_{g,geo} \cdot \left(\frac{D_m}{D_{m,geo}} \right)^{\frac{1}{\chi}}. \quad (3.16)$$

Nous présentons sur la figure 3.12 la distribution granulométrique des diamètres de giration obtenue grâce à l'analyse des clichés de microscopie électronique que nous avons présentée dans le chapitre 3.1.4.3. Un ajustement de type log-normal a été effectué sur cette distribution. De cet ajustement, nous pouvons déduire le diamètre de giration médian ($D_{g,geo}$) égal à 127 nm et l'écart-type géométrique associé égal à 1,6.

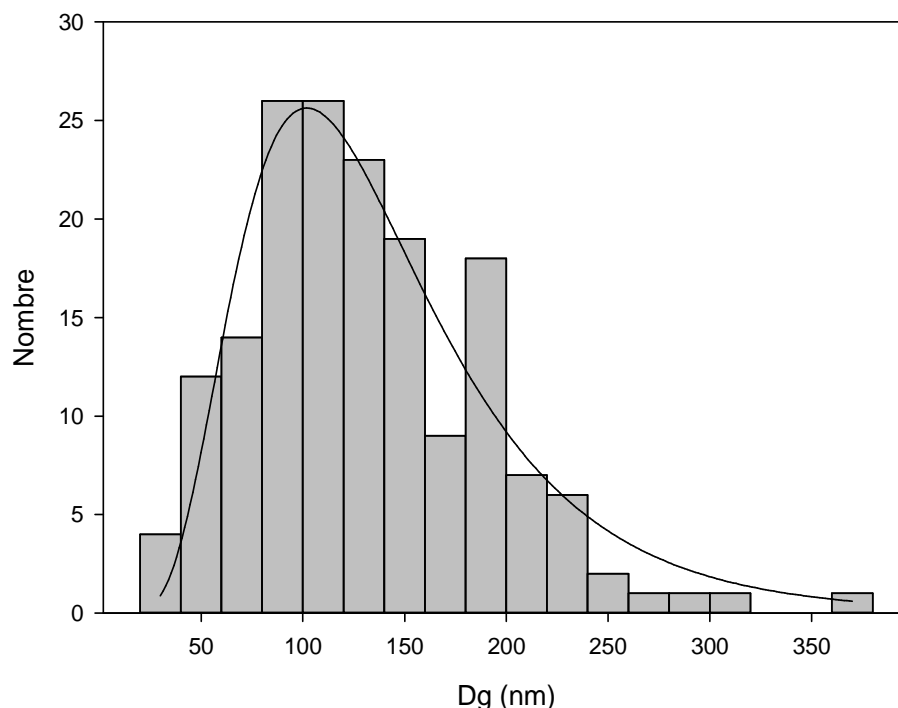


Figure 3.12 : Distribution granulo-métrique des diamètres de giration obtenue grâce à l'analyse des clichés de microscopie électronique

Le diamètre de mobilité électrique médian ($D_{m,geo}$) et l'écart-type géométrique associé sont déterminés grâce à la distribution granulo-métrique obtenue lors de la qualification du générateur CAST (figure 3.5). On obtient ainsi un diamètre de mobilité électrique médian $D_{m,geo}$ égal à 101 nm et un écart-type géométrique égal à 1,53. On peut ainsi, grâce à la relation 3.15, représenter l'évolution du paramètre β en fonction du diamètre de giration sur la figure 3.13. On remarque que ce paramètre augmente lorsque le diamètre de giration augmente.

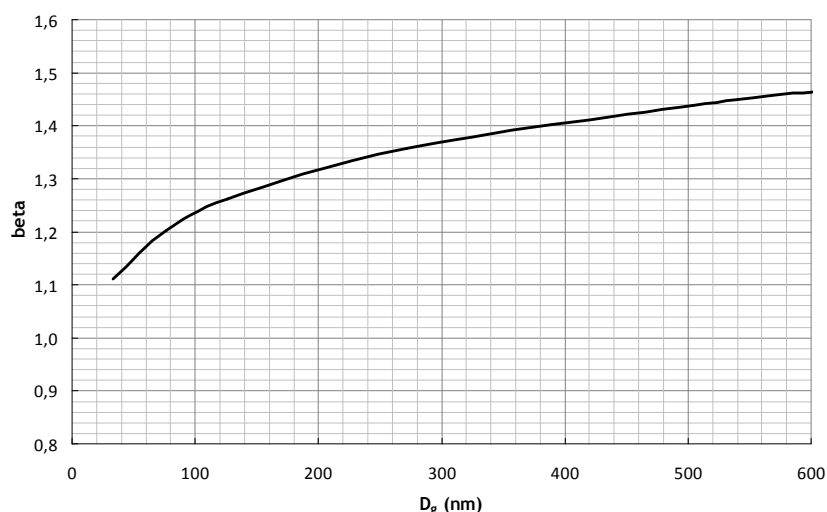


Figure 3.13 : Evolution du paramètre β en fonction du diamètre de giration.

Grâce à la relation 3.16 nous pouvons, pour chaque diamètre de mobilité sélectionné par le DMA (30, 64, 100, 200, 350, 430 et 600 nm), déterminer le diamètre de giration de l'agrégat correspondant. Le nombre de particules primaires composant l'agrégat est ensuite calculé à partir de la loi fractale (relation 1.48).

Dans le but de calculer l'incertitude sur le nombre de particules primaires déterminé à partir de la méthode de comparaison des distributions granulométriques, nous utilisons la méthode classique de propagation des erreurs basée sur les dérivés partielles de la fonction définissant la loi fractale :

$$N_{pp} = K_f \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f} . \quad (3.17)$$

Le préfacteur fractal K_f , la dimension fractale D_f , le diamètre de giration D_g et le diamètre des particules primaires D_{pp} représentent les variables et l'incertitude sur N_{pp} est calculée grâce à la relation :

$$\sigma_{N_{pp}}^2 = \left(\frac{\partial N_{pp}}{\partial K_f} \right)^2 \cdot \sigma_{K_f}^2 + \left(\frac{\partial N_{pp}}{\partial D_f} \right)^2 \cdot \sigma_{D_f}^2 + \left(\frac{\partial N_{pp}}{\partial D_g} \right)^2 \cdot \sigma_{D_g}^2 + \left(\frac{\partial N_{pp}}{\partial D_{pp}} \right)^2 \cdot \sigma_{D_{pp}}^2 , \quad (3.18)$$

où σ_{K_f} , σ_{D_f} , σ_{D_g} et $\sigma_{D_{pp}}$ représentent respectivement les écarts-types du préfacteur fractal K_f , de la dimension fractale D_f , du diamètre de giration D_g et du diamètre des particules primaires D_{pp} .

Les incertitudes sur D_f et K_f sont directement données par les relations 3.8 et 3.9 et sont respectivement égales à 9 % et 25 %. Le diamètre des particules primaires est déduit de l'ajustement de la distribution des mesures faites sur les clichés MET (figure 3.10). En raison de la complexité de l'obtention d'une incertitude sur la valeur du D_{pp} , nous ignorerons ce paramètre dans notre calcul d'incertitude sur le nombre de particules primaires.

L'incertitude sur le diamètre de giration est calculée par une nouvelle propagation d'erreur basée sur les dérivées partielles de la relation 3.16. Ainsi l'écart-type σ_{D_g} est donné, en ne prenant en compte que l'incertitude sur le diamètre de mobilité électrique D_m , par la relation :

$$\sigma_{D_g}^2 = \left(\frac{\partial D_g}{\partial D_m} \right)^2 \cdot \sigma_{D_m}^2 , \quad (3.19)$$

où σ_{D_m} représente l'écart-type du diamètre de mobilité électrique. L'incertitude sur le diamètre de mobilité électrique sélectionné par le DMA est égal à 2,2 % (donnée constructeur).

Nous pouvons, maintenant grâce à la relation 3.18 calculer une incertitude globale sur le nombre de particules primaires obtenu par la méthode de comparaison des distributions granulométriques. Cette incertitude type ($k=1$) varie entre 26 % et 60 %.

La deuxième méthode pour relier le diamètre de mobilité électrique au nombre de particules primaires de l'agrégat consiste à mesurer la masse de l'agrégat. Pour cela, nous avons utilisé un nouveau dispositif, le CPMA pour *Centrifugal Particle Mass Analyser* développé par Olfert et Collings (2005). Ce dispositif utilise la force électrostatique et la force centrifuge afin de classer les particules en fonction de leur masse. Le principe consiste à faire passer des particules chargées entre deux électrodes ayant des vitesses angulaires respectives différentes. Ainsi, en fonction de la différence de potentiel entre les deux électrodes, de la vitesse angulaire de chaque électrode, les particules sont sélectionnées selon leur masse et leur charge électrique.

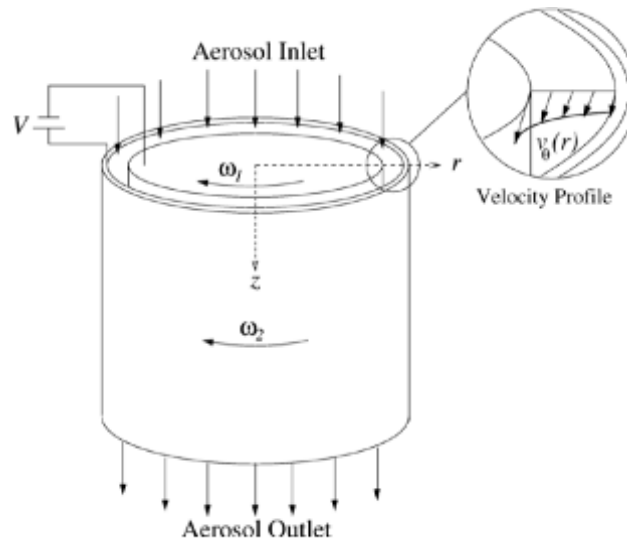


Figure 3.14 : Schéma de principe du *Centrifugal Particle Mass Analyser* (CPMA), Olfert et Collings (2005).

Ce dispositif nous permet donc de relier le diamètre de mobilité électrique d'un agrégat à sa masse. Nous avons déterminé la masse d'agrégats sélectionnés par un DMA, en faisant varier le diamètre de mobilité électrique de ceux-ci de 35 nm à 200 nm. Nous pouvons également déduire la masse d'une particule primaire à partir de la masse volumique du carbone ($1\,770\text{ kg/m}^3$, Park *et al.*, 2004) et du volume d'une particule primaire. Pour cela, afin de prendre en compte la distribution en taille des particules primaires (cf. figure 3.10), le volume de la particule primaire est calculé à partir du diamètre de masse moyenne de la granulométrie des particules primaires, donné par la relation de Hatch and Choate (Hinds, 1999) :

$$D_{\text{mpp}} = D_{\text{pp}} \exp\left(1,5 \cdot \ln^2 \sigma_{\text{gpp}}\right), \quad (3.20)$$

où D_{pp} et σ_{gpp} représentent respectivement le diamètre médian des particules primaires (19,7 nm) et l'écart-type géométrique associé obtenus par l'analyse des clichés MET (figure 3.10). Le diamètre de masse moyenne est égal à 21,8 nm.

Connaissant la masse de l'agrégat et la masse moyenne des particules primaires, on peut en déduire le nombre de particules primaires composant l'agrégat selon la relation :

$$N_{\text{pp}} = \frac{\text{masse}_{\text{agrégat}}}{\text{masse}_{\text{pp}}}, \quad (3.21)$$

soit

$$N_{\text{pp}} = \frac{\text{masse}_{\text{agrégat}}}{\rho_{\text{pp}} \cdot \frac{\pi}{6} \cdot D_{\text{mpp}}^3}. \quad (3.22)$$

La figure 3.15 présente l'évolution du nombre de particules primaires composant l'agrégat en fonction du diamètre de mobilité électrique de l'agrégat, à partir des mesures de masse effectuées grâce au CPMA. On observe que l'évolution du nombre de particule primaire en fonction de D_m suit une loi de puissance. Cette dernière va nous permettre de calculer le nombre de particules primaires correspondant aux agrégats sélectionnés par le DMA.

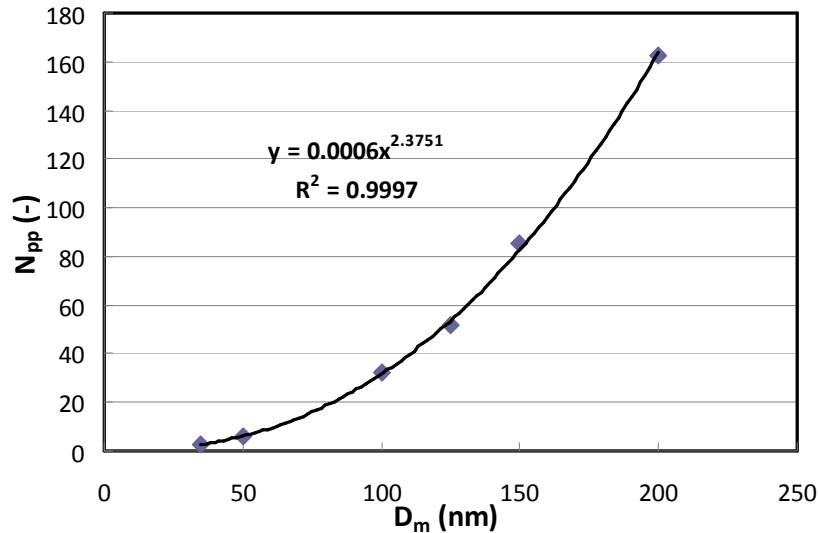


Figure 3.15 : Evolution du nombre de particules primaires composant l'agrégat en fonction du diamètre de mobilité électrique de l'agrégat.

L'incertitude sur le nombre de particules primaires obtenu par cette méthode est calculée par une nouvelle propagation d'erreur basée sur les dérivées partielles de la relation 3.22. Ainsi l'écart-type $\sigma_{N_{pp}}$ est donné par la relation :

$$\sigma_{N_{pp}}^2 = \left(\frac{\partial N_{pp}}{\partial \rho_{pp}} \right)^2 \cdot \sigma_{\rho_{pp}}^2 + \left(\frac{\partial N_{pp}}{\partial \text{masse}_{\text{agrégat}}} \right)^2 \cdot \sigma_{\text{masse}_{\text{agrégat}}}^2 + \left(\frac{\partial N_{pp}}{\partial D_{pp}} \right)^2 \cdot \sigma_{D_{pp}}^2, \quad (3.23)$$

où $\sigma_{\rho_{pp}}$, $\sigma_{\text{masse}_{\text{agrégat}}}$ et $\sigma_{D_{pp}}$ représentent respectivement les écarts-type de la masse volumique de la particule primaire, de la masse de l'agrégat obtenue avec le CPMA et du diamètre des particules primaires D_{pp} .

L'incertitude sur la masse volumique est donnée dans les travaux de Park *et al.*, 2004 et est égale à 4 %. L'incertitude sur la masse de l'agrégat obtenue par le CPMA est égale à 7,5 % (donnée constructeur). L'incertitude sur le diamètre des particules primaires ne sera pas prise en compte dans notre calcul.

Nous pouvons, maintenant grâce à la relation 3.23, calculer une incertitude globale sur le nombre de particules primaires obtenu par la mesure de la masse des agrégats avec le CPMA. Cette incertitude avec un intervalle de confiance de 95 % ($2 \cdot \sigma_{N_{pp}}$) est égale à 14,8 %.

Dans nos calculs d'incertitude, nous avons négligé l'incertitude sur le diamètre des particules primaires. Cependant, en imposant une incertitude arbitraire de 5 % (environ 1 nm) sur le diamètre des particules primaires, on observe une évolution significative de l'incertitude du nombre de particules primaires obtenus avec la mesure de la masse des agrégats avec le CPMA. Ainsi, l'incertitude sur le nombre de particules primaires passe de 14,8 % à 30 % en utilisant la relation 3.23.

Nous comparons sur la figure 3.16 l'évolution du nombre de particules primaires composant les agrégats sélectionnés par le DMA en fonction du diamètre de mobilité électrique obtenus par la comparaison des distributions granulométriques (D_m et D_g), le CPMA et les théories de Sorensen (2011) et Lall et Friedlander (2006).

Lall et Friedlander (2006) proposent une relation entre le diamètre de mobilité électrique D_m , le libre parcours moyen du gaz λ_g , le diamètre des particules primaires D_{pp} et le nombre de particules primaires N_{pp} :

$$\frac{D_m}{Cu(D_m)} = \frac{C^* \cdot N_{pp} \cdot D_{pp}^2}{12 \cdot \pi \cdot \lambda_g}, \quad (3.24)$$

où C^* dépend de la nature spéculaire ou diffuse de la réflexion des molécules sur l'agrégat. Dahneke (1982) propose, en supposant 7 % de réflexion spéculaire et 93 % de réflexion diffuse, de prendre une valeur de C^* égal à 9,17.

Sorensen (2011) propose une relation directe entre le nombre et la taille des particules primaires de l'agrégat et le diamètre de mobilité électrique, ainsi on a, pour le régime moléculaire :

$$D_m = D_{pp} \cdot N_{pp}^{0,46}, \quad (3.25)$$

et pour le régime continu :

$$D_m = D_{pp} \cdot N_{pp}^{0,46} \text{ si } N_{pp} < 100, \quad (3.26)$$

$$D_m = 0,65 \cdot D_{pp} \cdot N_{pp}^{0,56} \text{ si } N_{pp} > 100. \quad (3.27)$$

On observe sur la figure 3.16, que les résultats obtenus avec les deux méthodes sont supérieurs aux nombres de particules primaires calculés grâce aux relations de Lall et Friedlander (2006) et Sorensen (2011) pour des tailles de particules supérieures à 250 nm. Les résultats obtenus avec le CPMA sont en bon accord avec les relations de Sorensen et Lall et Friedlander pour des particules de taille inférieure à 200 nm. Le calcul des incertitudes sur les deux méthodes utilisées pour déterminer le nombre de particules primaires montre clairement une plus forte incertitude par la méthode de comparaison des distributions (30 % à 60 % au lieu de 15 % pour la méthode avec le CPMA). Pour cette raison, nous utiliserons par la suite les résultats du nombre de particules primaires obtenus avec le CPMA.

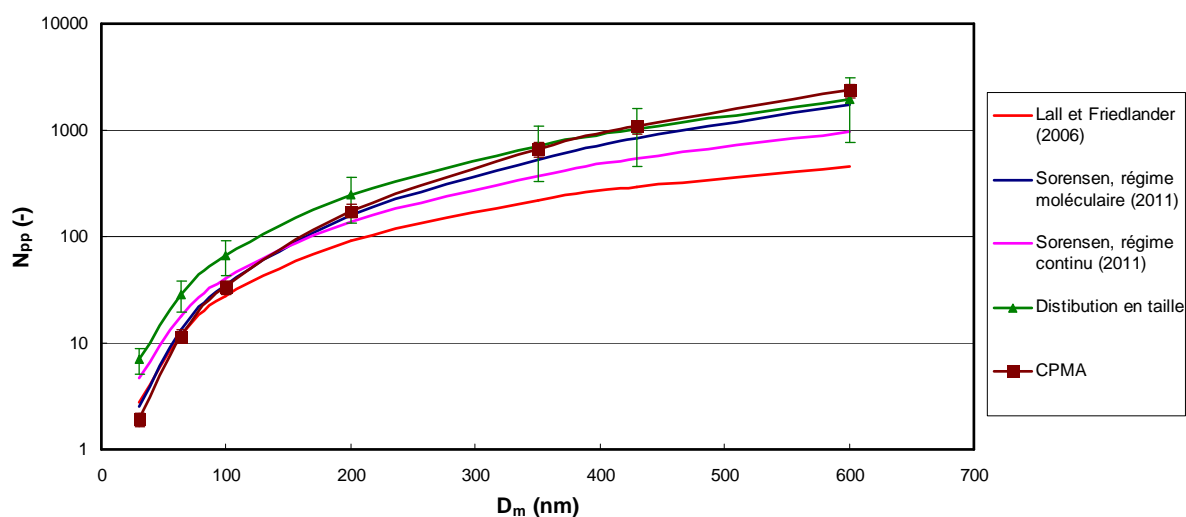


Figure 3.16 : Evolution du nombre de particules primaires composant les agrégats sélectionnés par le DMA en fonction du diamètre de mobilité électrique, comparaison entre les résultats obtenus par l'analyse des clichés MET, le CPMA et les théories de Sorensen (2011) et Lall et Friedlander (2006).

3.1.5. Prélèvement et dilution de l'aérosol

Un dilueur est utilisé en sortie du générateur d'agrégats afin de stabiliser les aérosols produits en évitant les éventuels phénomènes de coagulation ou agglomération des particules. Ce dilueur permet également de refroidir l'aérosol avant son injection dans le classificateur électrostatique. Ce système de dilution est composé d'une buse d'entrée, d'une buse annulaire et d'une chambre de mélange. Le système de dilution utilisé dans le cadre de notre étude est présenté en annexe D

3.1.6. Dispositif granulométrique et de classification des aérosols

Afin de caractériser la distribution en taille des particules, on utilise une méthode de classification électrique à l'aide d'un analyseur de mobilité électrique (DMA). Nous allons expliquer

les différentes étapes de cette méthode fondée sur la mesure de la mobilité électrique des particules au sein d'un champ électrique.

Le *Scanning Mobility Particle Sizer* (SMPS) TSI est un granulomètre permettant d'obtenir avec une résolution temporelle de quelques minutes la distribution granulométrique d'un aérosol. Il s'agit d'une référence dans le domaine de la métrologie des aérosols ; son seul inconvénient est dû à la source radioactive destinée à ioniser l'aérosol entrant. Il est composé de trois éléments :

- ↪ un *Differential Mobility Analyser* (DMA modèle 3080) permettant la sélection en taille des particules de l'aérosol,
- ↪ un *Condensation Particle Counter* (CPC modèle 3022A) permettant le comptage des particules,
- ↪ un impacteur situé à l'entrée du DMA et permettant de stopper les particules les plus grosses.

Les gammes de tailles mesurables dépendent des couples DMA/CPC utilisés. Dans les expérimentations menées, la gamme d'étude considérée couvre des tailles comprises entre 15 nm et 662 nm. L'ensemble des trois éléments composant le SMPS est présenté en annexe E.

Nous avons présenté dans le chapitre 3.1 le banc expérimental qui nous a permis de qualifier le SMTC. Nous allons maintenant présenter la qualification du SMTC réalisée et comment ont été pris en compte les éventuels artéfacts dus aux éléments composant le banc expérimental lors de la qualification.

3.2. Calibration du SMTC en version électrique

Afin de contrôler le bon fonctionnement du SMTC, nous devons effectuer des expériences préliminaires nous permettant de vérifier les côtes géométriques du dispositif, le comportement aéraulique ou encore la présence de fuites éventuelles dans le dispositif. Pour cela, nous avons réalisé une calibration du SMTC sans gradient de température mais en imposant une différence de potentiel électrique pour que le dispositif fonctionne comme un SMEC. Comme nous l'avons montré dans le chapitre 2, le fonctionnement de ce type d'analyseur est, par le biais des nombreuses études, bien maîtrisé en termes de géométrie, de comportement aéraulique ou encore de fonction de transfert. Nous allons donc vérifier l'accord entre les tensions de sélections théoriques et expérimentales pour des aérosols de latex de tailles données.

Nous présentons sur la figure 3.17 le montage expérimental du SMTC en version SMEC. Les particules de latex sont générées par l'atomiseur TSI et sélectionnées par le DMA avant leurs injections dans le SMTC. Le débit d'air filtré est imposé par le biais d'une pompe à palette 0-10 L/min et est contrôlé grâce à un débitmètre TSI de gamme 0-20 L/min. Le circuit d'air filtré (cf. figure 3.1) comporte un filtre en amont de la pompe afin de protéger celle-ci des particules non sélectionnées par le dispositif et un filtre en aval de la pompe afin de s'assurer de l'absence de particules dans l'air filtré Q_c lors de son injection dans le SMTC. La différence de potentiel est imposée par la mise en tension de la plaque inférieure par le biais d'un générateur de haute tension (0 à 10 000 V) et la mise à la terre de la plaque supérieure. En fonction des débits d'aérosols et d'air filtré, de la différence de potentiel entre les deux plaques, les particules sont sélectionnées par le SMTC et détectées par le CPC situé en sortie du dispositif. Le débit d'aérosol est imposé par ce même CPC et sera toujours égal à 0,3 l/min. En l'absence de gradient de température, les débits d'injection et d'extraction de l'air filtré et de l'aérosol sont égaux, nous avons donc $Q_a = Q_s$ et $Q_c = Q_m$.

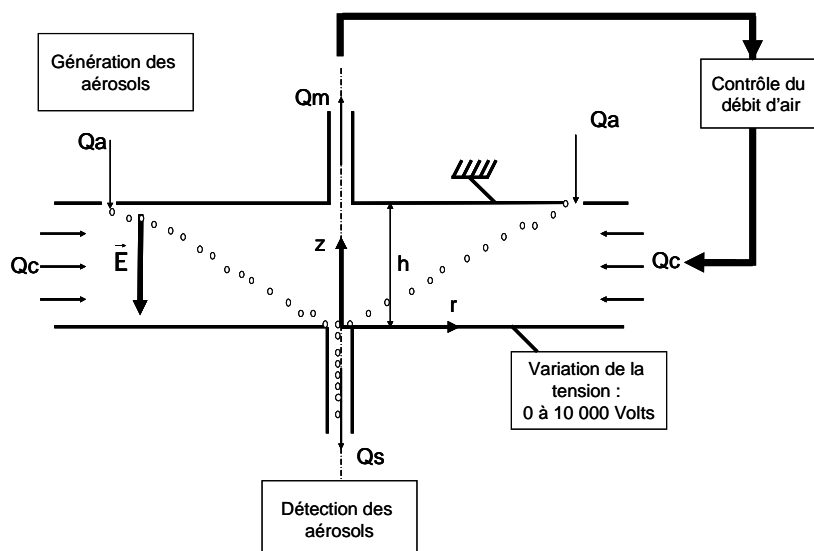


Figure 3.17 : Schéma de principe du montage expérimental du SMTC en version SMEC.

La première étape de cette calibration a été de vérifier l'absence de fuite dans le dispositif. Pour cela nous avons effectué des essais sans injection d'aérosols et avec l'ajout d'un filtre à très haute efficacité à l'entrée d'aérosol Q_a . Ces premiers tests ont permis de mettre en évidence une fuite au niveau de la fente d'injection qui a été repérée précisément grâce à un traçage à l'hélium.

Le problème de fuite résolu, nous avons effectué des essais avec des billes de latex de 200 nm de diamètre. Pour établir notre fonction de transfert, les débits utilisés sont de 3 l/min (contrôlé par le débitmètre TSI) pour l'air filtré Q_c et de 0,3 l/min pour le débit d'aérosol Q_a , imposé par le CPC. Nous injectons l'aérosol dans le SMTC et faisons varier sa tension par pas réguliers. Pour chaque pas de tension, nous relevons la concentration indiquée par le CPC. Nous obtenons ainsi la courbe de la figure 3.18, tout à fait conforme aux sorties d'un analyseur de mobilité électrique. En effet, nous retrouvons bien sur cette courbe le pic correspondant aux particules de 200 nm de diamètre portant une charge et le pic de 2 charges. La tension de sélection théorique pour les particules monochargées est de 746 Volts. Afin de déterminer la tension de sélection expérimentale, nous calculons par régression linéaire les courbes de tendance sur les parties montante et descendante du pic correspondant aux particules portant une charge. L'intersection de ces deux droites nous donne la tension de sélection expérimentale correspondant au maximum du pic. Dans l'exemple présenté sur la figure 3.18, nous trouvons une valeur de la tension égale à 752 Volts, ce qui correspond à une erreur relative de 0,8 %. Nous pouvons donc considérer que le SMTC fonctionne correctement en version électrique ce qui signifie qu'il n'existe pas de problème du aux côtes géométriques ou aux conditions aérauliques du dispositif.

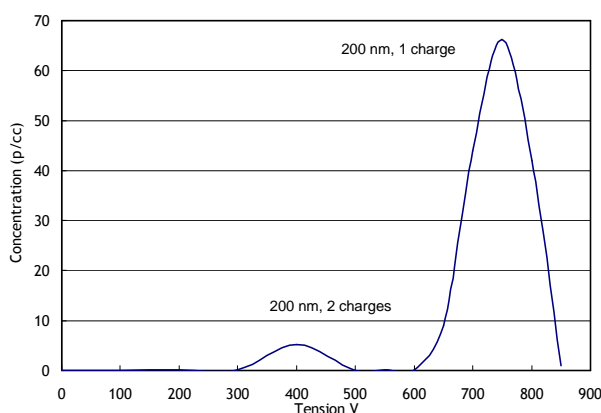


Figure 3.18 : Evolution de la concentration des particules en sortie du SMTC en fonction de la tension électrique appliquée et pour un débit d'air filtré Q_c de 3 l/min, un débit d'aérosol Q_a de 0,3 l/min et des particules de latex de 200 nm.

Dans le cas du SMTC en version thermique, la variation d'un gradient de température est bien plus complexe que la variation d'un potentiel électrique. En effet, l'inertie thermique du dispositif nous contraint à un long temps d'attente pour atteindre l'équilibre thermique ce qui est contraignant. Pour éviter ce problème, nous avons choisis que les tests en thermique se feront avec un gradient de température constant et par variation du débit d'air filtré Q_c .

Pour valider cette approche, nous avons effectué le même type de démarche que pour la variation de la tension. Cette fois, nous utilisons toujours un débit d'aérosol Q_a égal à 0,3 l/min et des particules de latex de 200 nm mais avec une tension imposée de 750 Volts. Nous faisons ensuite varier le débit d'air filtré Q_c par pas réguliers et notons la concentration mesurée par le CPC. Nous comparons sur la figure 3.19, la fonction de transfert électrique expérimentale obtenue pour des particules de 200 nm portant 1 charge avec la fonction de transfert théorique établit grâce à la relation 2.1. Nous remarquons que l'allure des courbes est très proche. La valeur théorique du débit Q_c de sélection des particules est égale à 3,02 l/min et nous trouvons, grâce aux courbes de tendance un débit Q_c expérimental égal à 2,966 l/min, ce qui donne un écart relatif de 1,82 %. Ce résultat confirme que le dispositif fonctionne bien en version électrique et que, de plus, il fonctionne tout aussi correctement par variation du débit que par variation de la tension.

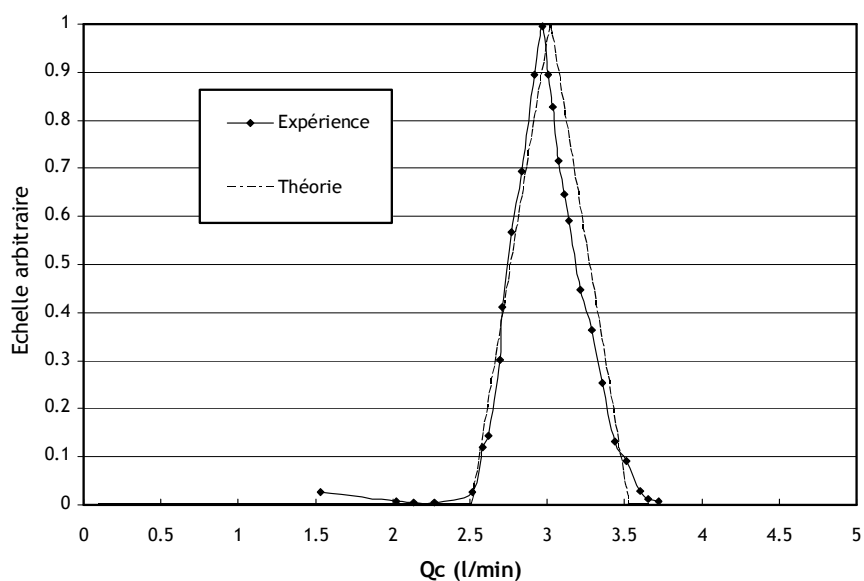


Figure 3.19 : Comparaison entre la fonction de transfert électrique théorique et expérimentale du SMTC en fonction du débit d'air filtré Q_c , pour des particules de latex de 200 nm, une tension de 750 V et un débit d'aérosol Q_a de 0,3 l/min.

3.3. Etablissement de la fonction de transfert thermique du SMTC

Après avoir validé le SMTC en version électrique, nous allons, dans cette section, procéder à la qualification du dispositif en version thermique. Cette qualification a plusieurs objectifs. Dans un premier temps, il s'agit de vérifier le comportement du SMTC lorsqu'il est soumis à une montée de température, en termes de relargage de particules notamment. Ensuite, nous allons montrer comment est établit la fonction de transfert thermique du SMTC, dont le protocole expérimental va sensiblement changer par rapport à la calibration électrique.

Le comportement du SMTC lorsqu'il est soumis à une montée de température est présenté en annexe F. Ce test nous a permis de vérifier l'absence de relargage de particules par le SMTC lorsqu'il est soumis à une montée en température.

Afin d'obtenir une plus grande précision sur les résultats obtenus en thermique, nous avons modifié le protocole expérimental d'établissement de la fonction de transfert. Le principe expérimental, comme décrit sur la figure 3.1, consiste à produire des aérosols avec un générateur de particules sphériques (billes de latex) ou de suies (agrégats). Ces particules sont ensuite sélectionnées grâce à un DMA afin de produire un aérosol monodispersé. Cet aérosol est, par la suite, injecté dans le SMTC avec un débit volumique Q_a et est extrait du même dispositif à un débit

volumique Q_s . La différence de température entre la plaque chaude et la plaque froide est imposé et constante. Le seul paramètre variable est le débit volumique d'air filtré Q_c . En fonction de l'ensemble de ces paramètres, les particules d'un diamètre donné sont sélectionnées par le SMTC. Pour établir la fonction de transfert du SMTC, nous faisons donc varier le débit d'air filtré par pas réguliers et mesurons la concentration des particules en sortie du SMTC avec le CPC.

A la différence des essais de calibrations électriques réalisés avec le SMTC, la concentration donnée par le CPC et le débit d'air filtré mesuré par le débitmètre TSI sont enregistrés grâce à une acquisition des données informatisée après chaque variation du débit Q_c . Cet enregistrement est continu et pour chaque pas de variation du débit d'air filtré nous attendons 3 à 5 min avant de passer au pas suivant. Ce protocole nous permet d'obtenir pour chaque variation du débit d'air filtré un palier de concentration stable.

Nous présentons sur les figures 3.20 et 3.21 les évolutions de la concentration de l'aérosol en sortie du SMTC mesurée par le CPC et du débit d'air filtré Q_{TSI} mesuré par le débitmètre TSI aux conditions standards de température et de pression (21 °C et 1013 kPa). Le SMTC fonctionne avec une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm. Nous remarquons, aussi bien pour la concentration que pour le débit d'air filtré, les paliers correspondant à chaque pas de variation du débit. Ces paliers nous permettent de minimiser les incertitudes liées aux fluctuations de la concentration mesurée par le CPC et du débit mesuré par le débitmètre.

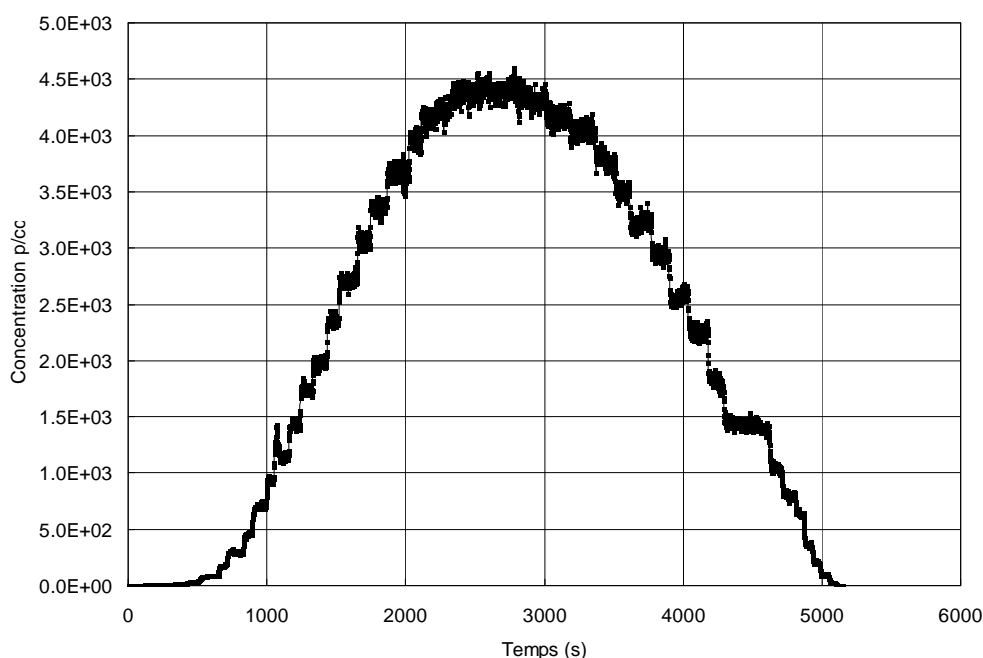


Figure 3.20 : Evolution de la concentration de l'aérosol mesurée en sortie du SMTC, pour une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm.

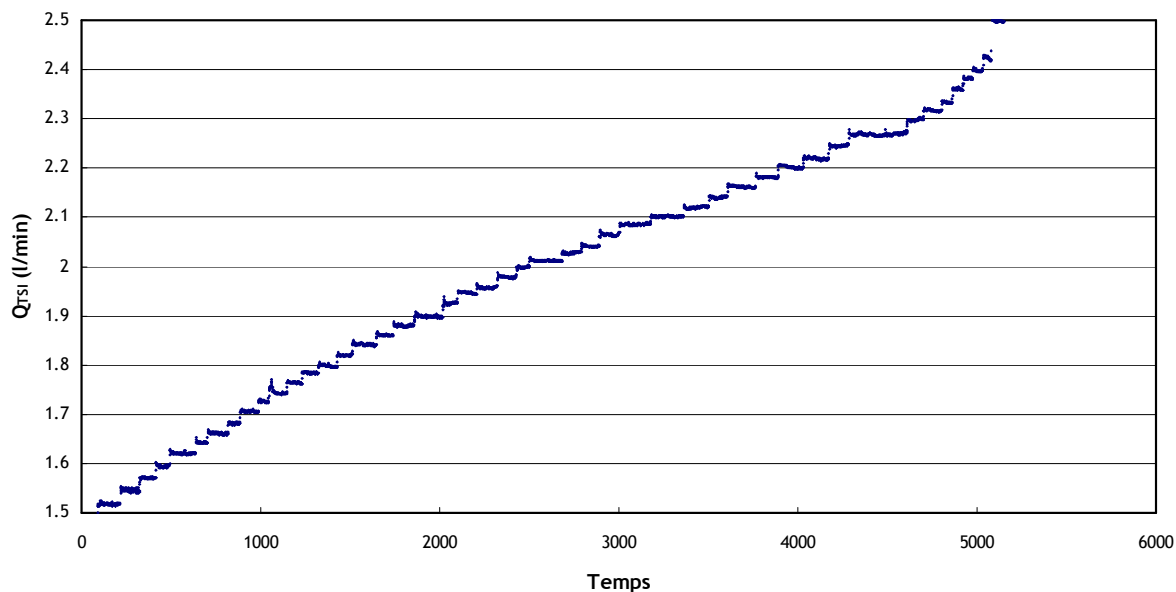


Figure 3.21 : Evolution du débit d'air filtré mesuré par le débitmètre TSI, pour une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm.

Nous calculons ensuite pour chaque palier (débit et concentration) la moyenne correspondante afin de pouvoir tracer l'évolution de la concentration en sortie du SMTC en fonction du débit d'air filtré. Nous représentons sur la figure 3.22 la fonction de transfert brute obtenue pour une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm. Nous remarquons, que l'allure de la fonction de transfert diffère de celle obtenue en mode électrique présentée et sur la figure 3.19. Nous allons dans la partie suivante justifier cette observation.

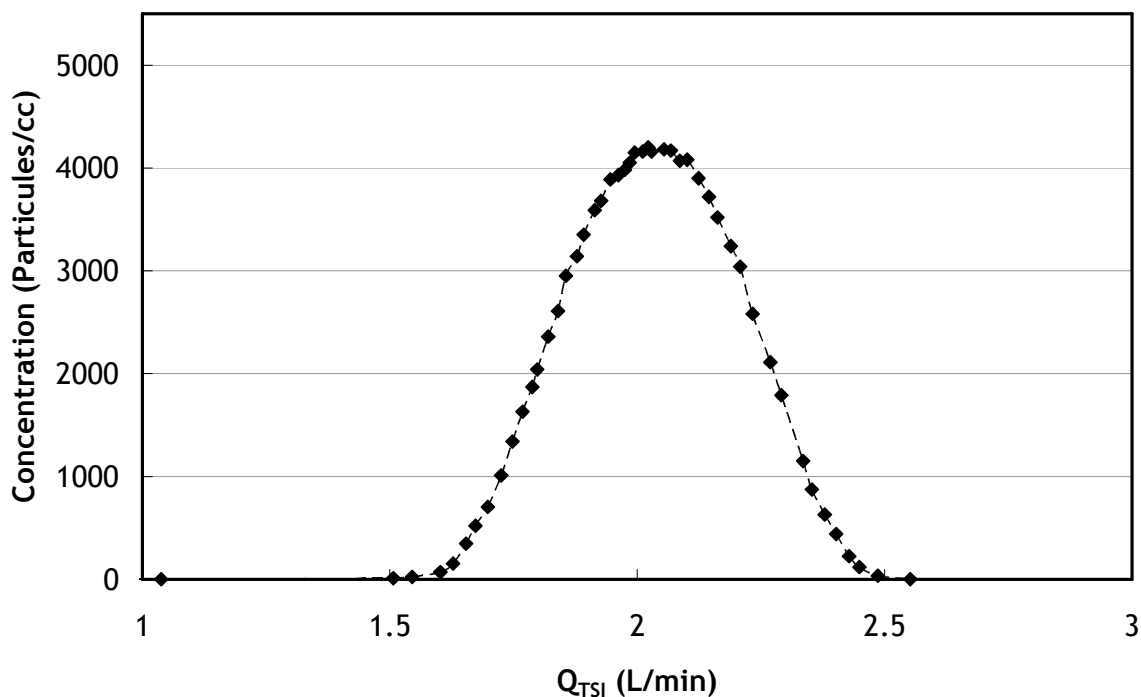


Figure 3.22 : Evolution de la concentration en sortie du SMTC en fonction du débit d'air filtré aux conditions standards de température et de pression, pour une température de la plaque chaude égale à 230 °C, une température de la plaque froide égale à 27 °C et avec des particules de latex de diamètre 200 nm.

3.4. Interprétation de la fonction de transfert du SMTC

3.4.1. Détermination de la vitesse effective de thermophorèse à partir de la fonction de transfert du SMTC

Nous avons vu, dans le chapitre 2 que la vitesse effective de thermophorèse se calcule grâce à la relation :

$$\tilde{V}_{th} = \frac{1}{a^2} \left(\frac{Q_c}{\pi} + \beta \right), \quad (3.28)$$

avec

$$\beta = \frac{|Q_s - Q_a|}{2\pi}. \quad (3.29)$$

Pour obtenir la vitesse de thermophorèse expérimentale, nous avons donc besoin de connaître le débit d'air filtré Q_c dans la zone de sélection des particules du SMTC et les débits d'aérosol injecté Q_a et sélectionné Q_s par le dispositif. Ces débits ne sont pas directement mesurable dans le dispositif. En effet les seuls débits maîtrisés lors des essais sont le débit mesuré par le CNC en sortie du SMTC et par le débitmètre TSI dans la boucle de recirculation de l'air filtré (reliant l'extraction de l'air Q_m à l'injection Q_c). Ce débitmètre nous donne un débit aux conditions standard de température et de pression (21,1 °C et 101 325 Pa). Pour établir la fonction de transfert expérimentale brute, le débit volumique mesuré par le débitmètre TSI est converti aux conditions expérimentales (température et pression) dans la zone de sélection des particules du SMTC par la relation :

$$Q_c = Q_{TSI} \left[\frac{273,15 + T_{SMTC}}{273,15 + 21,1} \right] \cdot \frac{101,3}{P_{SMTC}}, \quad (3.30)$$

où T_{SMTC} P_{SMTC} sont respectivement la température (°C) et la pression (kPa) dans la zone de sélection des particules du SMTC. La température dans cette zone est variable (existence d'un gradient), Néanmoins on peut considérer que la moyenne des températures de la plaque chaude et de la plaque froide mesurée par les sept thermocouples permet de déterminer le débit volumique Q_c . Cette hypothèse est justifiée par le fait qu'on impose un gradient de température linéaire entre la plaque chaude et la plaque froide.

Les débits volumiques Q_c , Q_a et Q_s nécessaires au calcul de la vitesse de thermophorèse sont ensuite déterminés grâce à la fonction de transfert expérimentale. Ainsi, une fois que la fonction de transfert brute est obtenue, nous calculons par régression linéaire les courbes de tendance sur les parties montante et descendante de la fonction de transfert. L'intersection de ces deux droites avec la valeur maximale de la courbe expérimentale donne un plateau qui correspond à la différence de débit volumique entre Q_a et Q_s . Cette différence est due à la différence de température entre la zone d'injection de l'aérosol (plaque chaude) et la zone d'extraction de l'aérosol (plaque froide). Nous représentons sur la figure 3.23 un exemple de détermination des débits Q_c , Q_a et Q_s à partir de la fonction de transfert expérimentale pour des billes de latex de 200 nm et un gradient de température de 50 750 K/m. Sur la figure 3.23, le plateau correspondant à $Q_s - Q_a$ est bien visible. Il est dû à une importante différence de température entre la plaque chaude à 230 °C et la plaque froide à 30 °C.

Enfin, l'intersection entre les deux droites nous donne le débit volumique d'air filtré Q_c correspondant au débit nominal de sélection des particules.

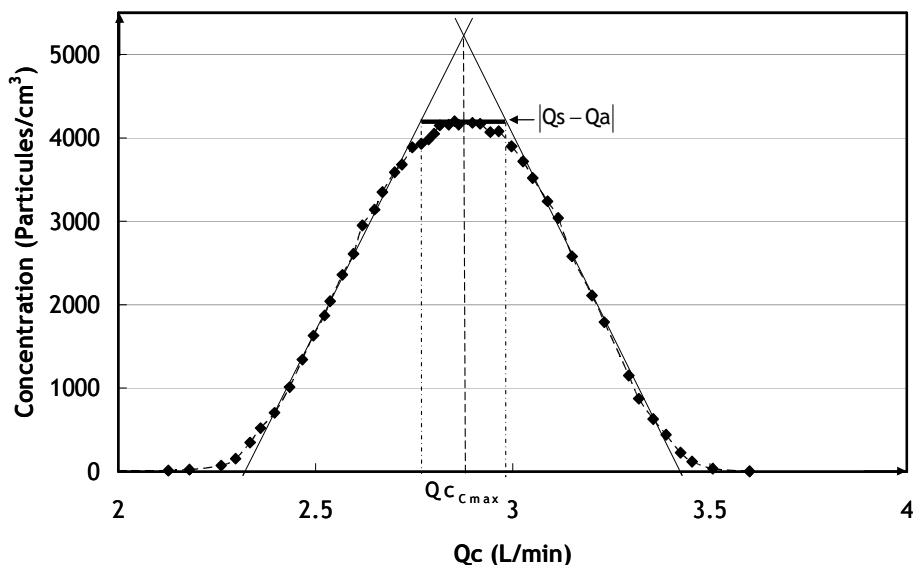


Figure 3.23 : Détermination des débits Q_c , Q_a et Q_s à partir de la fonction de transfert expérimentale, exemple pour des billes de latex de 200 nm et un gradient de température de 50 750 K/m.

Connaissant les différents débits Q_c , Q_a et Q_s et le rayon d'injection de l'aérosol, a , égal à 100 mm, nous pouvons ensuite calculer la vitesse de thermophorèse correspondante. Nous présentons dans le tableau 3.4 un exemple de résultats obtenus pour 3 mesures expérimentales avec des billes de latex de 200 nm et un gradient de température de 50 750 K/m. On observe d'une part, une bonne répétabilité des mesures et d'autre part que l'incertitude sur le calcul de la vitesse de thermophorèse vient principalement de la détermination de la différence entre les débits volumiques Q_a et Q_s .

3.3 : Exemple de résultats obtenus pour 3 mesures expérimentales avec des billes de latex de 200 nm et un gradient de température de 50 750 K/m.

	$ Q_s - Q_a $ (L/min)	Q_c (L/min)	\tilde{V}_{th} (cm/s)
Exp. 1	0,195	2,843	0,156
Exp. 2	0,208	2,888	0,159
Exp. 3	0,194	2,871	0,157
Moyenne	0,199	2,867	0,157
Ecart-type	0,008	0,023	0,001
CV (%)	3,9	0,8	0,9

3.4.2. Influence de la température sur la taille des particules

Comme nous l'avons déjà présenté, nous allons injecter des agrégats issus du générateur CAST et des billes de latex dans le SMTc. Ces particules vont, en traversant le volume tampon situé sur la partie supérieure du dispositif, être soumises à des températures pouvant atteindre 230°C. Afin de s'assurer de la validité de la vitesse de thermophorèse mesurée pour ce type de particules, nous avons effectué des mesures granulométriques en entrée et sortie du SMTc. Nous présentons sur la figure 3.24 le schéma de principe du montage pour la mesure granulométrique en sortie du SMTc. Les particules produites par les générateurs sont sélectionnées par un DMA et injecté dans le SMTc. Afin de pouvoir sélectionner les particules, le débit Q_c et le gradient de température (50 750 K/m, condition maximale de température) sont réglés de telle manière à correspondre au pic de la

fonction de transfert et sont maintenus constant. La mesure granulométrique des particules sélectionnées est ensuite réalisée par le biais d'un SMPS.

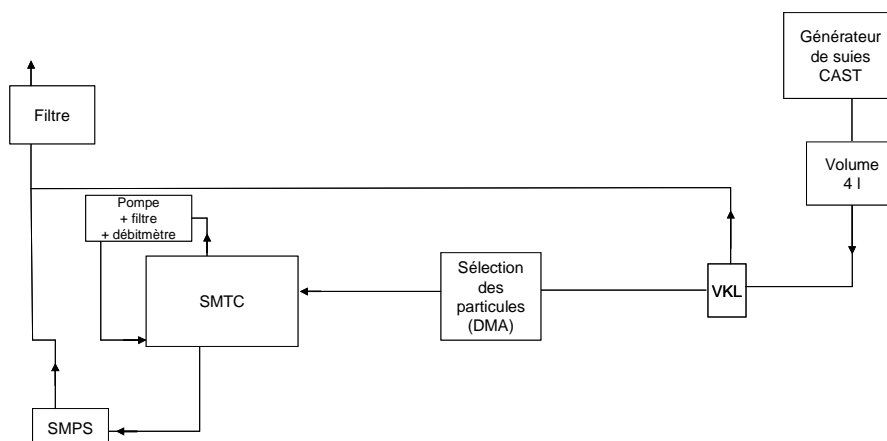


Figure 3.24 : Schéma de principe de la mesure de la granulométrie des particules sélectionnées en sortie du SMTc.

Dans les chapitres 3.1.2 et 3.1.3, nous avons effectué une mesure granulométrique de l'aérosol produit par le générateur d'agrégats avec et sans volume tampon (volume de 4 l en sortie du générateur). Pour chaque granulométrie, on sélectionne un diamètre de mobilité électrique correspondant au mode, à savoir 100 nm pour la granulométrie sans volume tampon et 170 nm pour celle avec volume.

La principale difficulté lors du traitement des données du SMPS réside dans la prise en compte de l'effet de charges multiples. Ce phénomène est décrit en annexe G où on peut voir sur la figure G3 que pour une mobilité électrique Z sélectionnée par le DMA correspond plusieurs diamètres de mobilité électrique, dépendant du nombre de charge que porte l'agrégat. D'un point de vue plus concret, nous avons calculé théoriquement la fraction de particules sortant du DMA lorsque qu'on sélectionne une mobilité électrique en fonction de l'efficacité de charges des particules (cf. annexe G) et de la distribution granulométrique de départ (en sortie du générateur CAST). Le résultat de ce calcul est représenté dans le tableau 3.4.

3.4 : Tableau récapitulatif de la fraction de particule sortante du DMA pour une mobilité électrique donnée.

Mobilité électrique sélectionnée : $Z = 2,7 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ (100 nm, 1 charge)				
Nombre de charges	1	2	3	4
Diamètre de mobilité électrique correspondant (nm)	100	151	195	236
Fraction des tailles de particules sélectionné par le DMA	80,5 %	16,8 %	2,4 %	0,3 %
Mobilité électrique sélectionnée : $Z = 1,1 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ (170 nm, 1 charge)				
Nombre de charges	1	2	3	4
Diamètre de mobilité électrique correspondant (nm)	170	270	362	453
Fraction des tailles de particules sélectionné par le DMA	63,8 %	24,8 %	8,4 %	3%

Nous représentons sur les figures 3.25 et 3.26 les résultats de la mesure granulométrique effectuée en sortie du SMTc pour une mobilité sélectionnée correspondant à des particules de 100 nm avec 1 charge (figure 3.25) et 170 nm avec 1 charge (figure 3.26) grâce à un DMA. Les résultats bruts de ces mesures granulométriques sont représentés en annexe H. On observe un bon accord entre les résultats granulométrique et les calculs théoriques représentés dans le tableau 3.5. On observe ainsi le pic correspondant au diamètre sélectionné par le DMA (100 ou 200 nm) et les pics

correspondant à des particules de 100 ou 200 nm portant 2 et 3 charges (respectivement 82 nm et 68 nm sur la figure 3.25 et 118 nm et 95 nm sur la figure 3.26).

Sur la figure 3.25, on remarque que les agrégats ayant des diamètres de mobilité électrique égal à 151 nm, 195 nm et 232 nm et portant respectivement 2, 3 et 4 charges sont également sélectionnés par le SMTC. Le même constat est observable sur la figure 3.26.

De ces essais on peut conclure, dans un premier temps que les températures de fonctionnement du SMTC ne modifient pas la taille des agrégats. Dans un second temps, on observe que la fraction de particules portant 2, 3 ou 4 charges en sortie du DMA n'est pas négligeable. De plus ces particules sont sélectionnables par le SMTC et peuvent donc modifier la fonction de transfert expérimentale. Afin de limiter cet effet des charges multiples, l'ensemble des essais réalisés avec les agrégats et présentés dans le chapitre 4 a été effectué avec une sélection des particules par le biais de deux DMA en série (figure 3.1). Nous avons recalculé théoriquement la fraction de particules sortant du DMA lorsque qu'on sélectionne une mobilité électrique en fonction de l'efficacité de charges des particules en prenant en compte la distribution granulométrique en sortie du premier DMA (particules portant 1, 2, 3 et charges). Ce calcul montre qu'on réduit l'effet des charges multiples sur l'aérosol sortant du second DMA. Ainsi, la fraction de particules portant 1 charge passe de 80 % en sortie du premier DMA à 93 % en sortie du second pour une sélection du diamètre en entrée de 100 nm et de 64 % à 82 % pour une sélection du diamètre en entrée de 170 nm. Le second DMA permet donc de réduire le nombre de particules portant plusieurs charges mais pas de le rendre nul. L'aérosol est donc quasi monodispersé en sortie du second DMA.

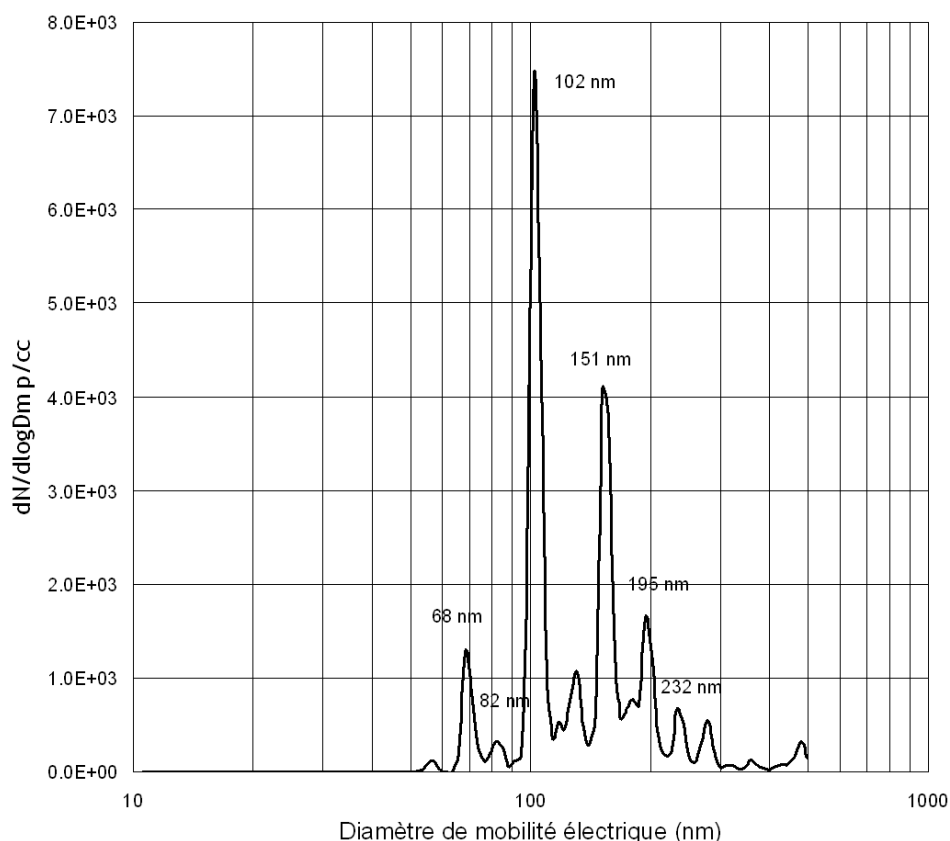


Figure 3.25 : Mesure granulométrique en sortie du SMTC pour une sélection d'agrégats de diamètre de mobilité de 100 nm et un gradient de température fixé à 50 750 K/m.

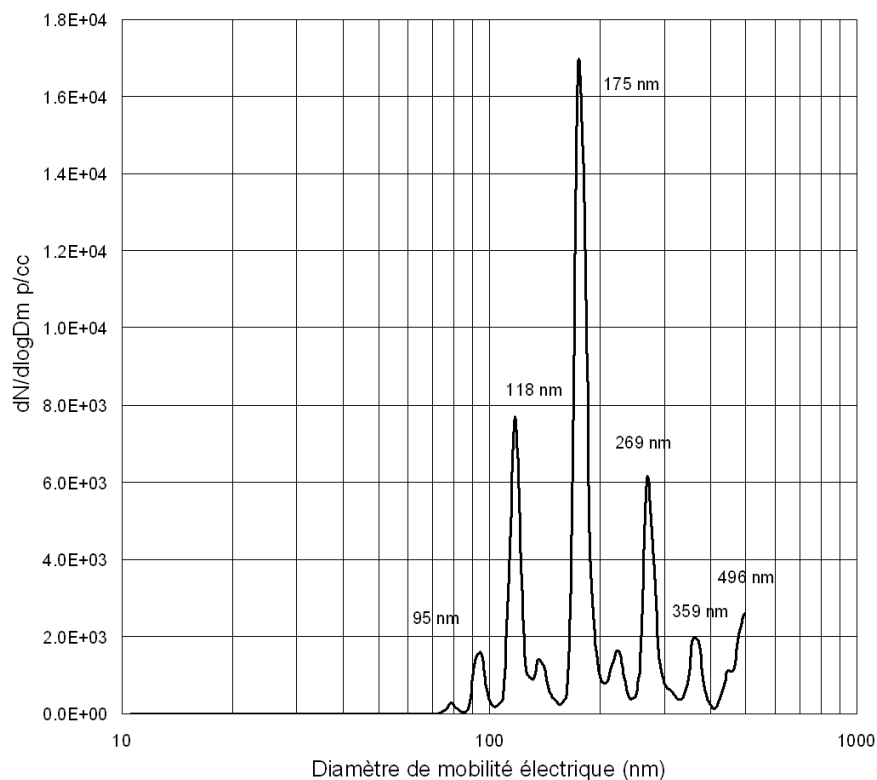


Figure 3.26 : Mesure granulométrique en sortie du SMTC pour une sélection d'agrégats de diamètre de mobilité de 170 nm et un gradient de température fixé à 50 750 K/m.

La figure 3.27 présente une comparaison entre la mesure granulométrique de billes de latex de 200 nm en entrée et sortie du SMTC réalisé avec un gradient de température de 50 750 K/m. On remarque que les billes de latex ne subissent pas de modification en taille lorsqu'elles traversent le SMTC. Comme pour les agrégats, on observe sur la figure 3.27 le pic correspondant aux billes de latex de 200 nm ainsi que les pics correspondant à des billes de latex de 200 nm portant respectivement 2 et 3 charges.

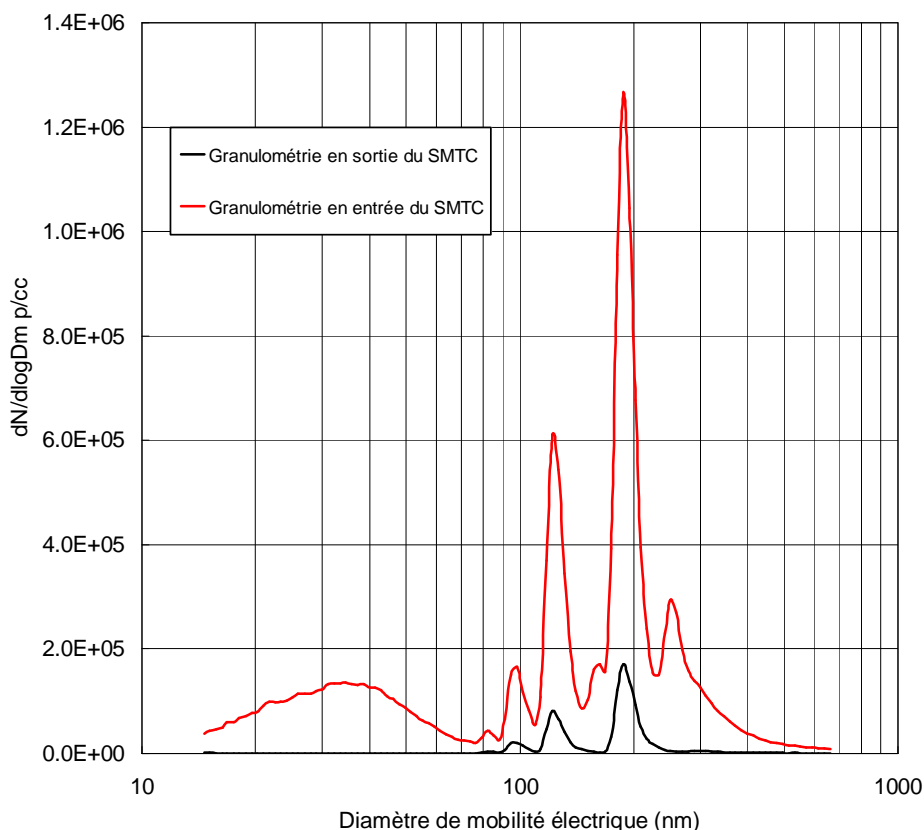


Figure 3.27 : Comparaison entre la mesure granulométrique de billes de latex de 200 nm en entrée et sortie du SMTC.

3.4.3. Influence de l'humidité relative dans le SMTC

Il est important de s'intéresser à l'effet de l'humidité relative dans le SMTC afin de vérifier s'il y a un risque de condensation qui pourrait perturber les résultats expérimentaux. Le risque de condensation peut se produire à l'injection du débit d'air filtré Q_c . En effet celui-ci entre par la partie inférieure du dispositif, à proximité de la plaque froide. L'air filtré entre dans le dispositif à la température ambiante qui a varié entre 18 et 24 °C lors des essais. L'humidité relative a été mesurée dans la boucle de recirculation de l'air filtré et a varié entre 22 % et 38 % pour les essais avec les billes de latex et entre 30 % et 45 % pour les essais avec les agrégats.

On peut ainsi déterminer par calcul la température de rosée qui est égale pour le cas le plus critique pour les billes de latex (température du débit d'air filtré Q_c à 24 °C et humidité relative à 38 %) à 8,82 °C.

Cette température de rosée est égale pour le cas le plus critique pour les agrégats (température du débit d'air filtré Q_c à 24 °C et humidité relative à 45 %) à 11,34 °C.

Avec ces températures de rosée, on remarque qu'il n'y a pas de risque de condensation pour les essais avec une température de la plaque froide égale à 27 °C (température supérieure à la température de rosée). Par contre, pour les essais réalisés avec une température de la plaque froide égale à 5 °C, il y a théoriquement un risque de condensation. Cependant la température de l'époxy dans la zone d'injection de l'air filtré Q_c est supérieure à celle de la plaque froide (température mesurée avec un thermocouple supérieure à 10 °C), ce qui enlève tout risque de condensation.

3.4.4. Incertitude sur la vitesse de thermophorèse des particules sélectionnées par le SMTC.

Dans le but de calculer l'incertitude sur la mesure de la vitesse effective de thermophorèse, nous utilisons la méthode classique de propagation des erreurs basée sur les dérivés partielles de la relation 3.28. Les débits Q_c et Q_s-Q_a ainsi que le rayon d'injection de l'aérosol a représentent les variables et l'incertitude sur V_{th} est calculée grâce à la relation :

$$\sigma_{V_{th}}^2 = \left(\frac{\partial V_{th}}{\partial a} \right)^2 \cdot \sigma_a^2 + \left(\frac{\partial V_{th}}{\partial Q_c} \right)^2 \cdot \sigma_{Q_c}^2 + \left(\frac{\partial V_{th}}{\partial (Q_s - Q_a)} \right)^2 \cdot \sigma_{Q_s - Q_a}^2, \quad (3.31)$$

où σ_a , σ_{Q_c} et $\sigma_{Q_s-Q_a}$ représentent respectivement les écarts-types de l'abscisse radiale d'injection de l'aérosol, du débit d'air filtré et de la différence de débits volumique Q_s-Q_a .

Le coefficient de dilatation thermique de l'aluminium est égal à $22,9 \mu\text{m}/\text{m.K}$. Par conséquent, la dilatation thermique de l'abscisse radiale d'injection de l'aérosol ($a = 10 \text{ cm}$) est égal à $0,5 \text{ mm}$ pour une température maximale de la plaque chaude de 230°C , ce qui conduit à une incertitude de $0,5 \%$.

L'incertitude type sur Q_s-Q_a est donnée par la répétabilité des mesures présentées dans le tableau 3.4. et est prise égal à 4% .

L'incertitude sur le débit d'air filtré est calculée par une nouvelle propagation d'erreur basée sur les dérivées partielles de la relation 3.30. Ainsi l'écart-type σ_{Q_c} est donné par la relation :

$$\sigma_{Q_c}^2 = \left(\frac{\partial Q_c}{\partial Q_{TSI}} \right)^2 \cdot \sigma_{Q_{TSI}}^2 + \left(\frac{\partial Q_c}{\partial T_{SMTC}} \right)^2 \cdot \sigma_{T_{SMTC}}^2 + \left(\frac{\partial Q_c}{\partial P_{SMTC}} \right)^2 \cdot \sigma_{P_{SMTC}}^2, \quad (3.32)$$

où $\sigma_{Q_{TSI}}$, $\sigma_{T_{SMTC}}$ et $\sigma_{P_{SMTC}}$ représentent respectivement les écarts-types du débit d'air filtré mesuré par le débitmètre TSI, la température moyenne plaque chaude/froide calculée et de la pression mesurée.

L'incertitude type du débitmètre TSI, est de 2% des valeurs mesurées (données constructeur) alors que l'incertitude sur la température et la pression sont respectivement égales à $0,5 \%$ et $0,2 \%$ (données constructeurs). Ces incertitudes nous permettent, grâce à la relation 3.32 de calculer une incertitude type sur le débit d'air filtré égale à $2,5 \%$.

Nous pouvons, maintenant grâce à la relation 3.31 calculer l'incertitude globale sur la vitesse effective de thermophorèse V_{th} avec un intervalle de confiance de 95% ($2 \cdot \sigma_{V_{th}}$) égale à $5,5 \%$.

Ce résultat montre la capacité du SMTC à déterminer une vitesse effective de thermophorèse avec une haute résolution.

3.5. Conclusion

Ce chapitre était consacré à la description du dispositif expérimental utilisé d'une part pour la qualification du Spectromètre Thermophorétique Circulaire et, d'autre part, pour l'étude du comportement thermophorétique des particules de suie. Nous avons présenté les moyens de productions des particules sphériques et non-sphériques ainsi que les dispositifs permettant de sélectionner les particules en termes de mobilité électrique.

Les agrégats produits par le générateur de suies ont été caractérisés grâce à une analyse d'images des particules par microscopie électronique (MET). Cette analyse nous a permis d'obtenir les paramètres morphologiques des agrégats (dimension fractale, préfacteur fractale, diamètre des particules primaires). Nous avons exposé deux méthodes permettant de connaître le nombre de particules primaires des agrégats, notamment en utilisant un CPMA avec une incertitude sur N_{pp} inférieure à 15% .

Le Spectromètre Thermophorétique Circulaire a été qualifié, dans un premiers temps, en mode électrique afin de valider les côtes géométrique du dispositif. Un protocole expérimental

permet l'établissement de la fonction de transfert thermique du SMTC. Contrairement au dispositif électrique classique, la fonction de transfert expérimentale du SMTC est réalisée à un gradient de température et un débit d'aérosol constant et par variation du débit d'air filtré Q_c injecté dans le dispositif. Les deux pentes de la fonction de transfert nous permettent de déterminer le débit volumique d'air filtré Q_c et la différence entre les débits volumiques d'injection et d'extraction de l'aérosol Q_a et Q_s . L'intersection entre les deux pentes de la fonction de transfert nous donnant le débit Q_c tandis que l'intersection entre les pentes et la valeur maximale de la fonction de transfert nous donne un plateau correspondant à $Q_s - Q_a$. La vitesse de thermophorèse correspondante à la fonction de transfert expérimentale est calculée à partir de la différence de débit volumique $Q_s - Q_a$ et du débit d'air filtré Q_c . Q_c est calculé à la température moyenne de la plaque chaude et de la plaque froide.

Avec des humidités relatives proches de 40 %, nous avons vérifié l'absence de condensation dans le dispositif qui pourrait perturber les mesures de vitesses de thermophorèse. Des calculs de température de rosée ont montré que la température de la plaque froide est supérieure à la température de rosée, et ceci pour les deux gradients de température.

Une comparaison entre les mesures granulométriques en entrée et en sortie du SMTC de billes de latex et d'agrégats a montré une stabilité du diamètre des particules injectés dans le SMTC. Le passage des particules (billes de latex ou agrégats) dans le SMTC n'influence donc pas leur taille. Ces mesures granulométriques ont également mis en avant un effet de charges multiples des particules sélectionnées par un DMA en amont du SMTC. En conséquent, nous avons choisi d'utiliser deux DMA en série afin d'obtenir un aérosol parfaitement monodispersé et de réduire cet effet de charges multiples.

Pour finir, un calcul de propagation d'erreurs a permis de calculer l'incertitude relative à la vitesse de thermophorèse des particules obtenue grâce au SMTC. Cette incertitude, égale 5,5 %, montre la capacité du SMTC à déterminer une vitesse effective de thermophorèse avec une haute résolution.

4. PRESENTATION ET DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Dans ce chapitre, les résultats expérimentaux sur la mesure des vitesses de thermophorèse des particules sphériques et non sphériques sont présentés

Dans un premier temps, nous exposerons les résultats obtenus avec des billes de latex ayant permis la validation du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire. Pour cela, les résultats seront comparés avec les théories et les expériences de la littérature.

Une seconde partie de ce chapitre est consacrée à la présentation des résultats expérimentaux obtenus avec des agrégats de suies de combustion. Ces résultats sont comparés avec les essais sur les billes de latex dans le but de montrer l'influence de la morphologie fractale de ces agrégats sur la vitesse de thermophorèse.

Pour clore ce chapitre, nous avancerons dans la dernière partie un certain nombre d'hypothèses permettant d'expliquer les résultats observés expérimentalement.

4.1. Mesure de la vitesse de thermophorèse pour des particules sphériques

4.1.1. Comparaison des résultats avec les théories

Afin de valider l'utilisation d'une température moyenne pour calculer la vitesse théorique de thermophorèse, nous avons calculé l'évolution de la vitesse de thermophorèse locale dans le SMTC entre la plaque froide et la plaque chaude. Avec un profil de température linéaire entre les deux plaques, nous pouvons calculer l'évolution de la masse volumique, de la viscosité dynamique et du coefficient de thermophorèse entre les deux plaques. Le résultat de ces calculs pour un gradient de température imposé entre les deux plaques de 50 750 K/m est représenté en annexe I.

Nous représentons sur la figure 4.1 l'évolution de la vitesse de thermophorèse locale dans le SMTC entre la plaque froide et la plaque chaude, pour un gradient de température égal à 50 750 K/m et pour une bille de latex de 100 nm. La distance z représente la distance, en mm, par rapport à la plaque froide. La vitesse de thermophorèse est calculée à partir de la relation de Talbot (relation 1.30). On observe que la vitesse de thermophorèse dépend fortement de la température locale. Nous avons également représenté sur la figure 4.1 la moyenne des vitesses locales de thermophorèse calculées (carré rouge) qui est égale à 0,1652 cm/s. En calculant la vitesse de thermophorèse à partir de la température moyenne de la plaque chaude et de la plaque froide, on obtient une valeur égale à 0,1658 cm/s. On remarque que l'écart entre les deux vitesses est particulièrement faible (0,4 %), ce qui nous permet de valider la démarche de comparaison des résultats expérimentaux avec une vitesse de thermophorèse théorique calculée à la température moyenne de la plaque chaude et de la plaque froide. Cependant, ce résultat est valide pour un profil de température linéaire, ce qui est le cas dans le SMTC au vu des résultats de l'étude thermique (figure 2.30).

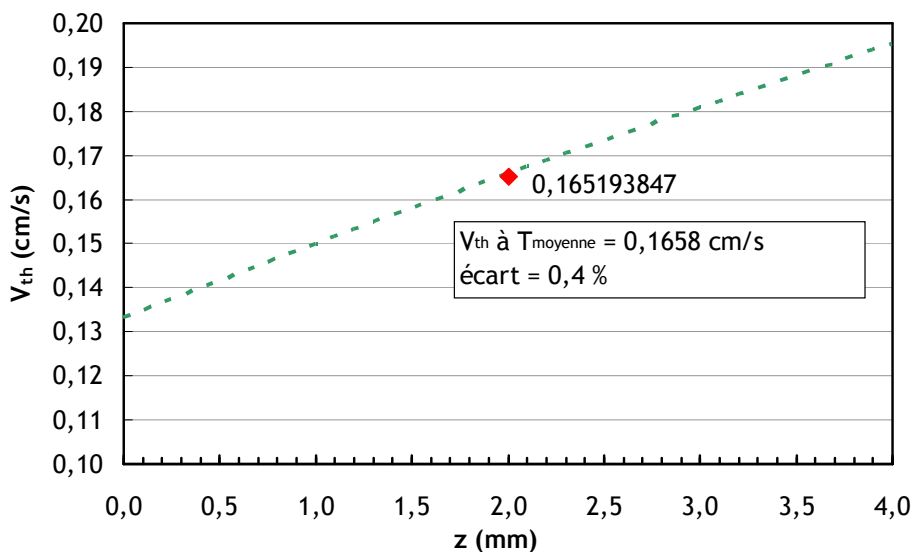


Figure 4.1 : Evolution de la vitesse de thermophorèse locale dans le SMTc en fonction de la distance par rapport à la plaque froide.

On présente dans les figures 4.2 et 4.3 les résultats de mesure de la vitesse de thermophorèse pour des billes de latex en fonction du diamètre des particules. Pour la figure 4.2, les résultats ont été obtenus pour cinq tailles de particules (diamètre de 64, 100, 200, 430 et 500 nm) et pour un gradient de température égal à 12 750 K/m, ce qui correspond à une température de plaque chaude égale à 56 °C et à une température de plaque froide égale à 5 °C. Pour ce gradient de température et cette gamme de diamètre, on obtient des nombres de Knudsen compris entre 0,25 et 2. Pour la figure 4.3, les résultats ont été obtenus pour les mêmes tailles de particules et pour un gradient de température égal à 50 750 K/m, ce qui correspond à une température de plaque chaude égale à 230 °C et à une température de plaque froide égale à 27 °C. Pour ce gradient de température et cette gamme de diamètre, on obtient des nombres de Knudsen compris entre 0,4 et 3. Pour chaque diamètre et pour chaque gradient de température, trois à quatre mesures de vitesse de thermophorèse ont été effectuées.

L'ensemble des résultats représentés dans les figures 4.2 et 4.3 est comparé aux théories de Talbot, Beresnev et Chernyak, Yamamoto qui sont valables pour l'ensemble du nombre de Knudsen et Waldmann et Epstein qui représentent respectivement les limites de ces théories dans le domaine moléculaire et continu. Les paramètres physiques du gaz utilisés dans le calcul de ces théories (viscosité dynamique, masse volumique, libre parcours moyen et conductivité thermique) sont calculés à la température correspondant à la valeur moyenne des températures de la plaque chaude et de la plaque froide. La conductivité thermique des billes de latex est gardée constante et égale à 0,105 W/m.K.

Nous constatons sur les figures 4.2 et 4.3 que les résultats obtenus par application du modèle de Talbot sont en désaccord avec nos résultats expérimentaux pour les deux gradients de température. Les coefficients A, B et C dans le modèle de Talbot ont été choisis respectivement à 1,257, 0,40 et 0,55, évalués à température ambiante. Ce modèle fournit toujours des valeurs plus élevées de la vitesse de thermophorèse pour l'ensemble des diamètres étudiés. Cette observation est conforme aux conclusions de Prodi *et al.* (2007), qui ont aussi obtenu une surestimation en utilisant le modèle de Talbot, en confrontation avec leurs mesures en conditions de microgravité, avec de l'azote comme gaz porteur, et avec un nombre de Knudsen dans la gamme 0,05 à 0,8.

Le modèle de Yamamoto et Ishihara (1988) est en désaccord avec les mesures obtenues dans cette étude. Ce désaccord est observé à la fois pour la version originale du modèle proposé par Yamamoto et Ishihara, et pour la version modifiée qui prend en compte une force de traînée de type Millikan.

Pour des faibles tailles de particule, les résultats des mesures tendent vers la solution asymptotique de Waldmann. Cependant, la théorie de Waldmann est supérieure à nos valeurs expérimentales. Ce résultat peut être justifié par le fait que nos valeurs du nombre de Knudsen sont

inférieures à 10, ce qui implique qu'aucuns diamètres de particules étudiés ne se trouvent dans le régime strictement moléculaire. Pour les tailles de particules proches du domaine continu, nos valeurs tendent vers la solution asymptotique d'Epstein. Nos valeurs du nombre de Knudsen sont supérieurs à 0,1 ce qui signifie que les diamètres étudiés ne se trouvent pas dans le régime continu et justifie le fait que nous n'atteignons pas la théorie d'Epstein.

Sur l'ensemble des tailles de particules étudié, le modèle de Beresnev et Chernyak est le seul qui fournit un bon accord avec nos mesures. Sur les figures 4.1 et 4.2, on trace les résultats obtenus avec l'utilisation du modèle de Beresnev dans le cas d'une accommodation complète ($\alpha_t=1$ et $\alpha_m=1$). Nous discuterons de l'influence des facteurs d'accommodation sur la vitesse de thermophorèse dans la section 4.1.2. Pour les deux gradients de température, les figures 4.1 et 4.2 montrent un bon accord avec le modèle de Beresnev et Chernyak, et on obtient pour un gradient de température égal à 12 750 K/m un écart maximal de 9 % entre la théorie et les résultats d'essais et un écart maximal de 7 % pour un gradient de température égal à 50 750 K/m.

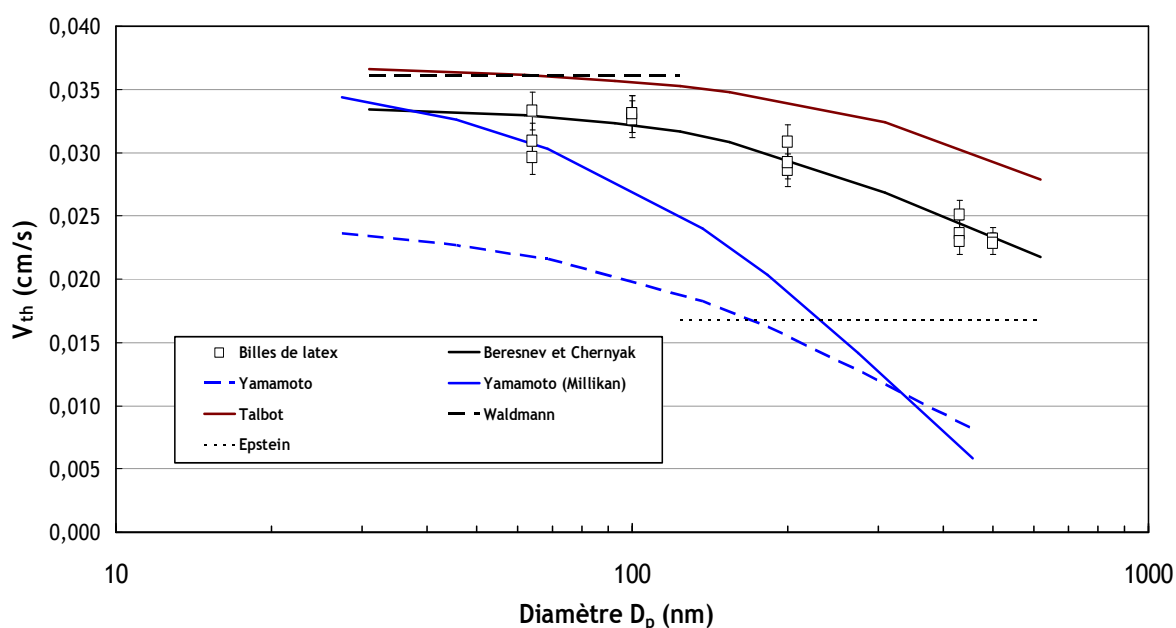


Figure 4.2 : Vitesse de thermophorèse en fonction du diamètre des particules pour un gradient de température égal à 12 750 K/m avec l'incertitude associée (eq. 3.31), comparaison aux modèles théoriques.

Les figures 4.2 et 4.3 montrent, par ailleurs, une très faible dispersion de nos résultats expérimentaux. On peut cependant noter que la dispersion est plus faible pour les résultats expérimentaux obtenus avec un gradient de température de 50 750 K/m que pour le gradient de 12 750 K/m. Ainsi, on obtient un coefficient de variation inférieur à 5,9 % pour les essais réalisés pour un gradient de température de 12 750 K/m et inférieur à 1,7 % pour un gradient de température de 50 750 K/m. Cette différence en termes de dispersion peut être justifiée par l'incertitude sur le débit d'air filtré entrant dans le spectromètre thermophorétique circulaire. En effet, les essais réalisés pour un gradient de température de 12 750 K/m nécessitent l'utilisation de faibles débits Q_c (inférieurs à 1 l/min) avec une incertitude relative plus importante que pour les essais réalisés pour un gradient de température de 50 750 K/m (cf. chapitre 3).

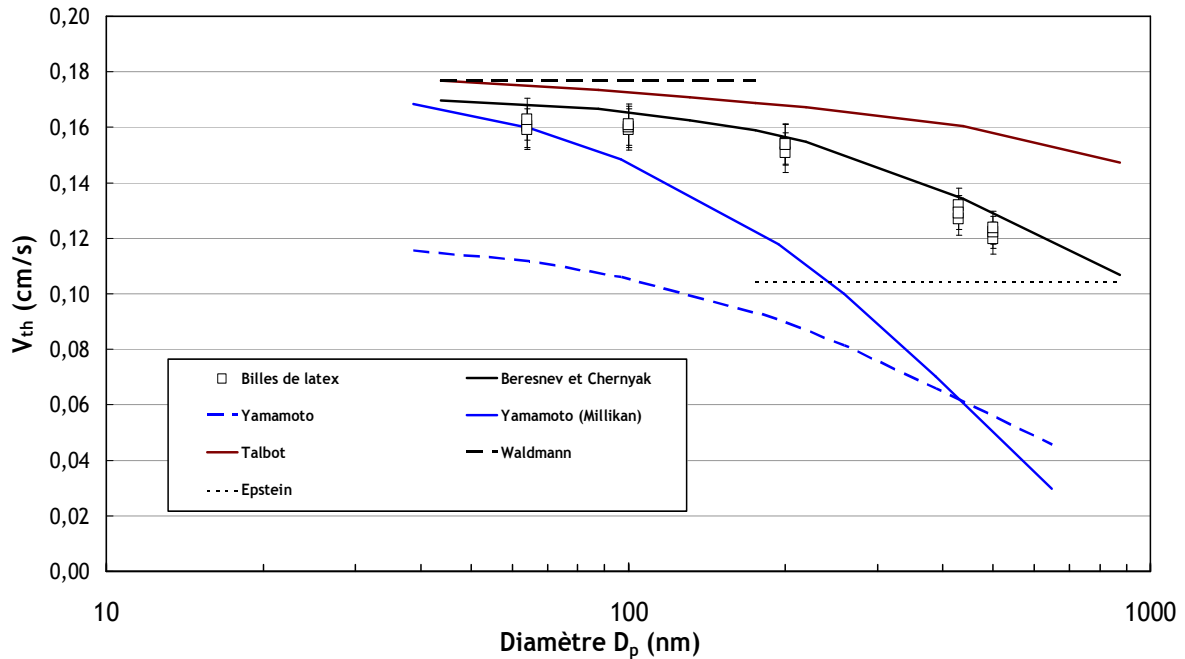


Figure 4.3 : Vitesse de thermophorèse en fonction du diamètre des particules pour un gradient de température égal à 50 750 K/m avec l'incertitude associée (eq. 3.31), comparaison aux modèles théoriques.

Nous reportons dans les figures 4.4 et 4.5 la comparaison entre notre détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse pour des particules de latex et les résultats obtenus en utilisant le modèle de Beresnev et Chernyak, avec $\alpha_t = 1$ et $\alpha_m = 1$. Nous représentons également sur les figures 4.4 et 4.5 les courbes représentant une variation de plus ou moins 10 % sur le modèle de Beresnev. Le modèle de Beresnev et Chernyak apparaît, pour les deux gradients de température, comme le modèle donnant le meilleur accord, avec un écart inférieur à 10 % avec nos mesures expérimentales. Cependant, nous allons par la suite nous interroger sur la validité de ce bon accord entre nos résultats expérimentaux et le modèle de Beresnev avec des facteurs d'accommodation égaux à 1.

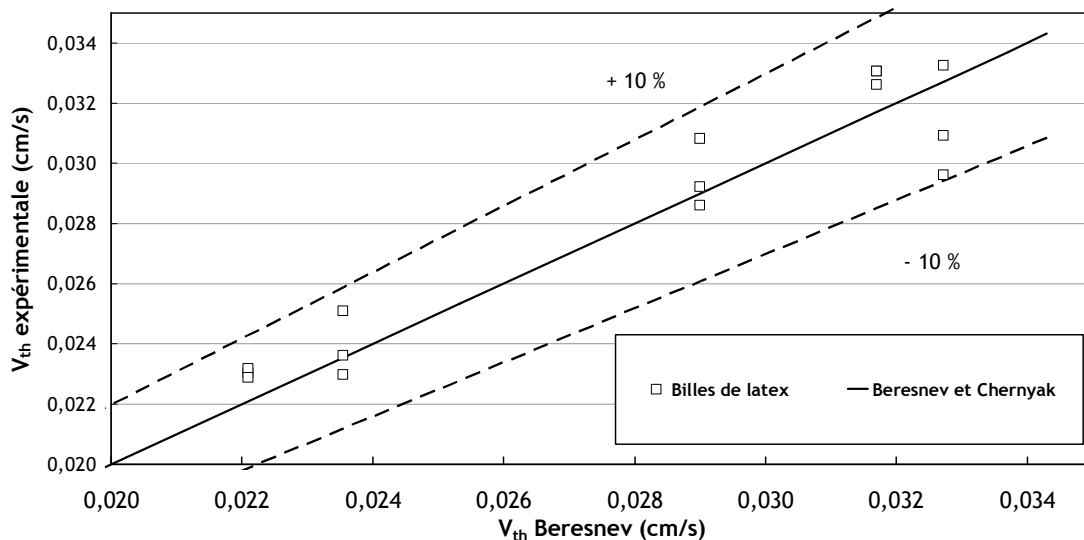


Figure 4.4 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse avec les résultats obtenus par application du modèle de Beresnev et Chernyak (avec $\alpha_t = 1$ et $\alpha_m = 1$) pour un gradient de température de 12 750 K/m.

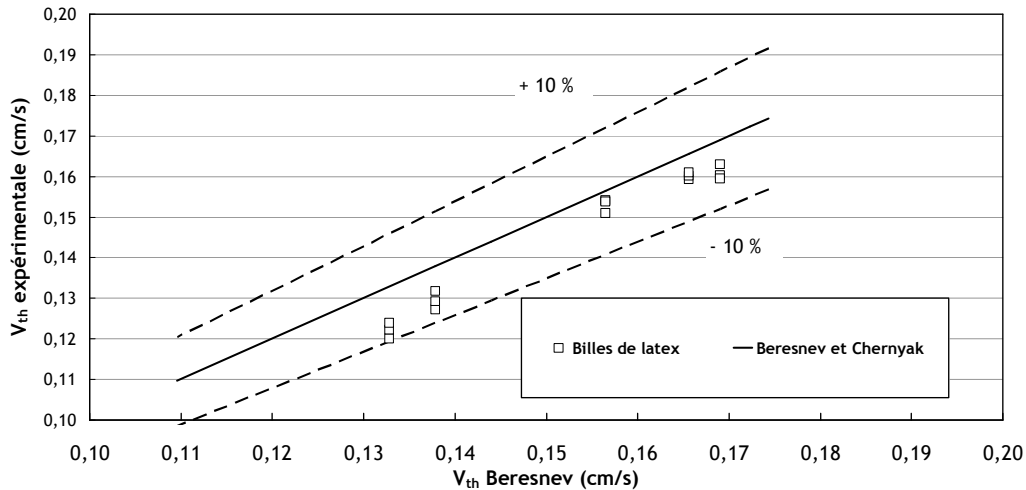


Figure 4.5 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse avec les résultats obtenus par application du modèle de Beresnev et Chernyak (avec $\alpha_t = 1$ et $\alpha_m = 1$) pour un gradient de température de 50 750 K/m.

4.1.2. Comparaison des résultats avec les résultats expérimentaux de la littérature

Afin de valider les résultats obtenus avec les billes de latex, nous allons, dans cette partie, comparer nos résultats avec les résultats expérimentaux de la littérature. On présente dans le tableau 4.1 une revue, issue de Zheng (2002), qui détaille les conditions d'essais mises en œuvre par différents auteurs, pour réaliser la mesure directe de la force thermophorétique. L'ensemble des expérimentations citées dans ce tableau ont été réalisées à l'aide d'une cellule de Millikan modifiée (décrite dans le chapitre 1).

Tableau 4.1 : Conditions d'essais des résultats expérimentaux présentés en figure 4.5 (d'après Zheng, 2002).

Légende	Particule	k_g / k_p	Référence
SR	Huile de lin	0,110	Saxton et Ranz, 1952
SC-2	Tricrésyl phosphate	0,101	Schadt et Cadle, 1961
RL	Tricrésyl phosphate	0,123	Rosenblatt et Lamer, 1946
LD-3	polystyrène	0,164	Li et Davis, 1995
LD-4	polystyrène	0,164	Li et Davis, 1995

Nous présentons sur la figure 4.6 les résultats des travaux présentés dans le tableau 4.1, en termes de coefficient de thermophorèse K_{th} . Les résultats sont confrontés aux modèles de la littérature, évalués avec un rapport des conductivités thermiques gaz/particules égal à 0,1 sur la figure 4.6. Sur la gamme des valeurs du nombre de Knudsen, on note une assez large dispersion des mesures. Cependant les résultats les plus récents obtenus par Li et Davis (1995) sont en bon accord avec le modèle de Beresnev et Chernyak avec un nombre de points de mesures expérimentales important.

On peut cependant noter un écart important entre les mesures expérimentales de Li et Davis et le modèle de Beresnev et Chernyak pour les nombres de Knudsen supérieurs à 3. Li et Davis attribuent cet écart à la perturbation de l'établissement du gradient de température dans l'enceinte lors de leurs essais pour des nombres de Knudsen supérieurs à 3.

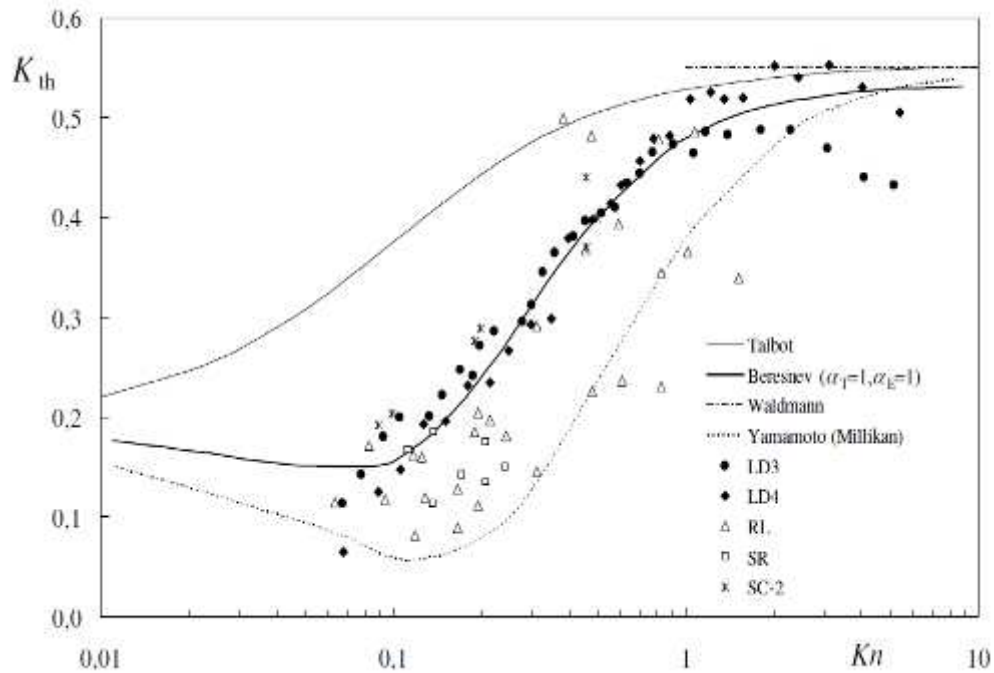


Figure 4.6 : Coefficient de thermophorèse issus de la littérature (légende des mesures dans le tableau 4.1), en comparaison aux modèles de la littérature (Sagot, 2010).

Les résultats obtenus par l'étude du dépôt par thermophorèse par Sagot *et al.* (2009) conduisent à la même conclusion que Li et Davis (1995), à savoir un bon accord entre le modèle de Beresnev et Chernyak et leurs résultats expérimentaux sur des gouttes d'huile. Prodi *et al.* (2007) ont réalisés des mesures de vitesse de thermophorèse en conditions de microgravité, avec différents gaz vecteurs pour l'aérosol et en utilisant une technique de reconstruction de trajectoires de particules. Ils ont noté que la force de traînée selon le modèle de Beresnev dépend essentiellement de α_m , et qu'elle est en bon accord avec la force de traînée de Millikan dans le cas $\alpha_m = 1$. En conséquence ils ont suggéré d'utiliser une valeur du coefficient $\alpha_m = 1$. Pour minimiser l'écart entre leurs résultats d'essais et le modèle de Beresnev, Prodi *et al.* (2007) ont également suggéré d'utiliser une valeur du coefficient d'accommodation thermique inférieure à 1. Ils arrivent à des valeurs de $\alpha_t = 0,4$ pour de l'hélium et de $\alpha_t = 0,9$ pour de l'azote comme gaz vecteur. Dans leur étude, Sagot *et al.* (2009) utilisent de l'air comme gaz vecteur, et par un ajustement utilisant une minimisation par la méthode des moindres carrés arrivent à déterminer une valeur du coefficient d'accommodation thermique égale à 0,93 ce qui permet une minimisation de l'écart observé entre leurs résultats expérimentaux et le modèle de Beresnev.

Nous reportons dans la figure 4.7 la comparaison entre les résultats expérimentaux de cette étude pour des particules de latex avec les résultats expérimentaux obtenus par Sagot *et al.* (2009) sur des gouttes d'huile et pour un gradient de température identique de 12 750 K/m. Sur la figure 4.7, sont également représentés les résultats calculés avec le modèle de Beresnev et Chernyak avec des facteurs d'accommodation thermique et mécanique ($\alpha_t = 1$ et $\alpha_m = 1$) d'une part et des facteurs d'accommodation thermique et mécanique ($\alpha_t = 0,93$ et $\alpha_m = 1$) d'autre part. Nos résultats expérimentaux obtenus avec les billes de latex sont en bon accord avec ceux obtenus avec des gouttes d'huile par Sagot *et al.* (2009) pour des diamètres supérieurs à 200 nm. Nous obtenons par contre des valeurs inférieures pour des diamètres inférieurs à 100 nm. Comme nous avons pu le voir précédemment, nos résultats sont très proche du model de Beresnev calculé avec des facteurs d'accommodations égaux à 1. Cependant, on observe que nos résultats s'écartent du modèle de Beresnev lorsqu'on diminue le facteur d'accommodation thermique. Néanmoins, on observe également, avec les résultats de Sagot, qu'une diminution de ce facteur ne permet forcément un meilleur accord. En effet, avec un facteur d'accommodation thermique égal à 0,93 on remarque que les mesures expérimentales de Sagot sont légèrement sous-estimées avec le modèle de Beresnev pour des particules de diamètre inférieur à 100 nm et que le modèle surestime les vitesses

de thermophorèse pour des particules de diamètre supérieur à 250 nm. En conséquence, même si l'utilisation de $\alpha_T = 0,93$ permet de minimiser l'écart global entre le modèle et les résultats de Sagot pour une gamme de taille de particules, on ne peut pas dire que $\alpha_T = 0,93$ permet de mieux représenter V_{th} que l'utilisation de $\alpha_T = 1$ au vu des données de Sagot et du SMTC, notamment pour des particules avec des diamètres supérieurs à 250 nm.

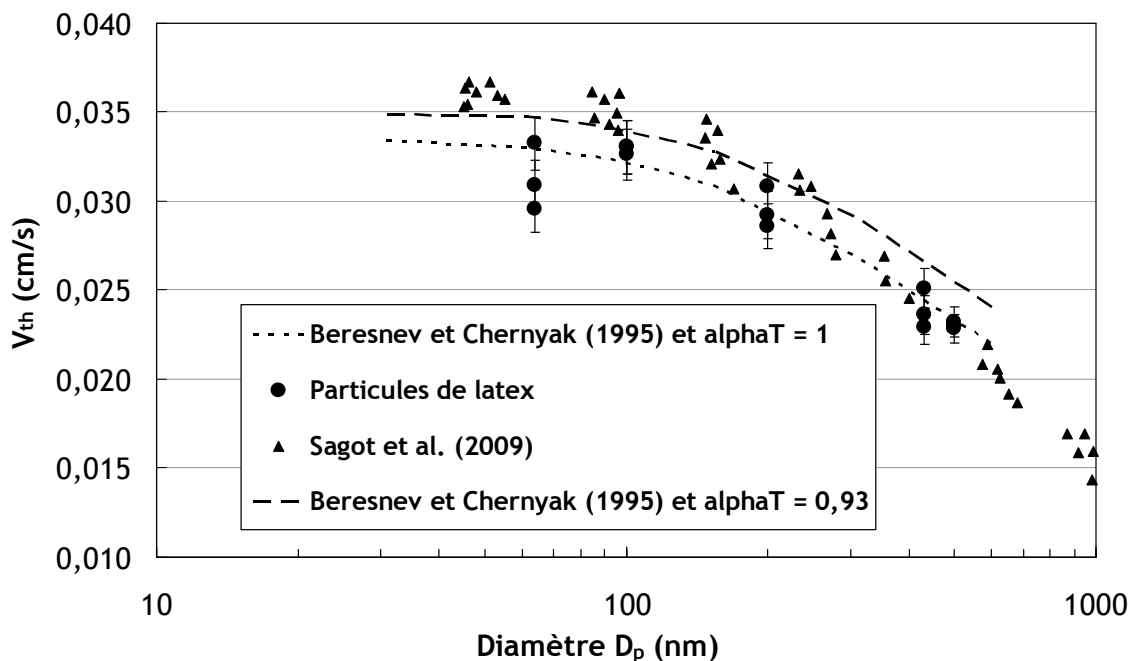


Figure 4.7 : Comparaison entre les résultats expérimentaux de cette étude avec les résultats obtenus par Sagot *et al.* (2009) pour un gradient de température de 12 750 K/m.

Les travaux de Li et Davis (1995), Prodi *et al.* (2007) et Sagot *et al.* (2009) ont montré que le modèle de Beresnev et Chernyak (1995) permet d'obtenir une estimation de la vitesse de thermophorèse de particules sphériques. La comparaison de nos résultats expérimentaux sur la vitesse de thermophorèse de billes de latex avec les travaux de Sagot *et al.* (2009) a permis de confirmer la pertinence de nos résultats d'essais et ainsi affirmer la capacité du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire à déterminer des vitesses de thermophorèse.

4.1.3. Conclusion

Dans l'objectif de valider le SpectroMètre, nous avons réalisé des essais avec des particules sphériques (billes de latex) dont le comportement thermophorétique est connu et expliqué par de nombreuses théories. Nous avons comparé nos résultats expérimentaux avec les différents modèles de vitesses de thermophorèse disponibles dans la littérature. Bien que largement utilisé pour l'évaluation de dépôts thermophorétique, le modèle de Talbot fournit toujours des valeurs de V_{th} plus élevées que celles déterminées par nos mesures, dans la gamme des diamètres de cette étude (64 à 500 nm). Par ailleurs, on constate que le modèle de Yamamoto et Ishihara (1988) sous-estime la valeur de la vitesse de thermophorèse, et ceci même lorsqu'on considère une version modifiée de ce modèle en prenant en compte une loi de traînée de type Millikan.

Nous obtenons un bon accord entre les vitesses de thermophorèse déterminées avec le SMTC et celles obtenues par application du modèle de Beresnev et Chernyak (1995). Ces résultats confirment les conclusions de Li et Davis (1995), Prodi *et al.* (2007) et Sagot *et al.* (2009), cependant il s'est avéré que pour obtenir un bon accord entre nos mesures et la théorie de Beresnev, nous n'avons pas besoin de choisir un coefficient d'accommodation thermique inférieur à 1. En effet, ces coefficients permettent de prendre en compte l'interaction collisionnelle entre les molécules du gaz et la particule. Pour obtenir un bon accord entre leurs résultats expérimentaux et

le modèle de Beresnev, Prodi *et al.* (2007) et Sagot *et al.* (2009) ont diminué le facteur d'accommodation thermique α_t à 0,9 pour Prodi *et al.* (2007) et à 0,93 Sagot *et al.* (2009) tout en conservant le coefficient d'accommodation mécanique α_m égal à 1.

La comparaison de nos résultats expérimentaux avec le modèle de Beresnev et Chernyak sur deux gradients de température (12 750 K/m et 50 750 K/m) montre une plus faible dispersion de nos résultats pour les essais réalisés avec un gradient de température égal à 50 750 K/m avec un coefficient de variation inférieur à 1,7 %. Cette différence se justifie par une incertitude relative sur le débit d'air filtré Q_c plus importante sur les essais réalisés avec le gradient de température le plus faible (cf. chapitre 3).

La comparaison de nos résultats expérimentaux avec les différents modèles d'évaluation de la vitesse de thermophorèse disponibles dans la littérature d'une part, et les travaux expérimentaux de Li et Davis (1995), Prodi *et al.* (2007) et Sagot *et al.* (2009) d'autre part, nous a permis de mettre en évidence la pertinence des résultats de vitesse de thermophorèse obtenus avec le SMTC pour des particules sphériques (billes de latex).

4.2. Mesure de la vitesse de thermophorèse pour des agrégats de suies de combustion

4.2.1. Comparaison des résultats obtenus avec les billes de latex et les agrégats

Nous reportons dans la figure 4.7 la comparaison entre les résultats obtenus pour des billes de latex et ceux obtenus avec les agrégats en fonction du diamètre de mobilité électrique. Nous représentons également sur la figure 4.7 les incertitudes sur les vitesses de thermophorèse mesurées des agrégats (eq. 3.31). Les résultats représentés ont été obtenus pour sept tailles d'agrégats (diamètres de mobilités électriques égaux à 30, 64, 100, 200, 350, 430 et 600 nm). Des clichés des différents diamètres, réalisés par microscopie électronique par transmission, sont représentés en annexe J. Nous avons constaté sur les figures 4.3 et 4.5 une plus faible dispersion des résultats expérimentaux pour les essais réalisés avec un gradient de température égal à 50 750 K/m, en conséquence, le choix a été fait de réaliser les essais avec les agrégats dans la configuration du gradient de température le plus élevé, égal à 50 750 K/m ce qui correspond à une température de plaque chaude égale à 230°C et à une température de plaque froide égale à 27°C. Nous avons, pour chaque diamètre de particules et pour chaque gradient de température, effectué 3 à 5 mesures de vitesses de thermophorèse.

Dans un premier temps, nous remarquons une bonne répétabilité des résultats obtenus avec le SMTC pour les agrégats. Nous observons sur la figure 4.7 une faible dispersion des résultats avec un coefficient de variation inférieur à 1,4 % pour l'ensemble des diamètres étudiés (3 à 5 vitesses de thermophorèse mesurées pour chaque diamètre), ce qui confirme une meilleure résolution du SMTC lors de son utilisation avec un fort gradient de température.

Dans un second temps, nous constatons sur la figure 4.7 un écart important entre les résultats d'essai réalisés avec les billes de latex et les agrégats. Alors que les vitesses de thermophorèse pour les billes de latex diminuent lorsque le diamètre des particules augmente, la vitesse de thermophorèse des agrégats augmente avec le diamètre de mobilité électrique. Ainsi, on observe un écart grandissant entre les billes de latex et des agrégats à mesure que la taille augmente jusqu'à obtenir pour un diamètre de mobilité électrique égal à 430 nm une différence de 40 % entre la vitesse de thermophorèse d'un agrégat et la vitesse de thermophorèse d'une bille de latex.

Enfin, nous présentons également sur la figure 4.8 les valeurs obtenues avec le modèle de Beresnev et Chernyak (1995). Nous avons vu précédemment que les vitesses de thermophorèse obtenues avec des billes de latex sont très proches du modèle de Beresnev. Nous avons donc rajouté sur la figure 4.8 les résultats obtenus par application du modèle de Beresnev pour des sphères de carbone. La différence entre les modèles de Beresnev appliqué aux billes de latex et aux billes de carbone résulte dans la conductivité thermique, ainsi nous avons pris pour le carbone une conductivité thermique égale à 4,2 W/K.m, ce qui correspond à la conductivité thermique du carbone graphite proche de la nature des agrégats étudiés. Pour des particules de diamètres inférieurs à 100 nm, nous pouvons constater une faible influence de la différence de conductivité thermique sur le modèle de Beresnev. Au contraire, quand la taille des particules augmente, la

vitesse de thermophorèse calculée pour les billes de latex devient de plus en plus supérieure à celle obtenue avec du carbone. En conséquence, si on compare les vitesses de thermophorèse obtenues pour les agrégats avec le modèle de Beresnev appliqué à des sphères de carbone, on arrive à une différence bien plus importante par rapport aux valeurs mesurées que celle qui est constatée entre les agrégats et les billes de latex (avec un agrégat de 430 nm et la théorie de Beresnev un écart égal à 65 % est constaté dans le cas des sphères de carbone).

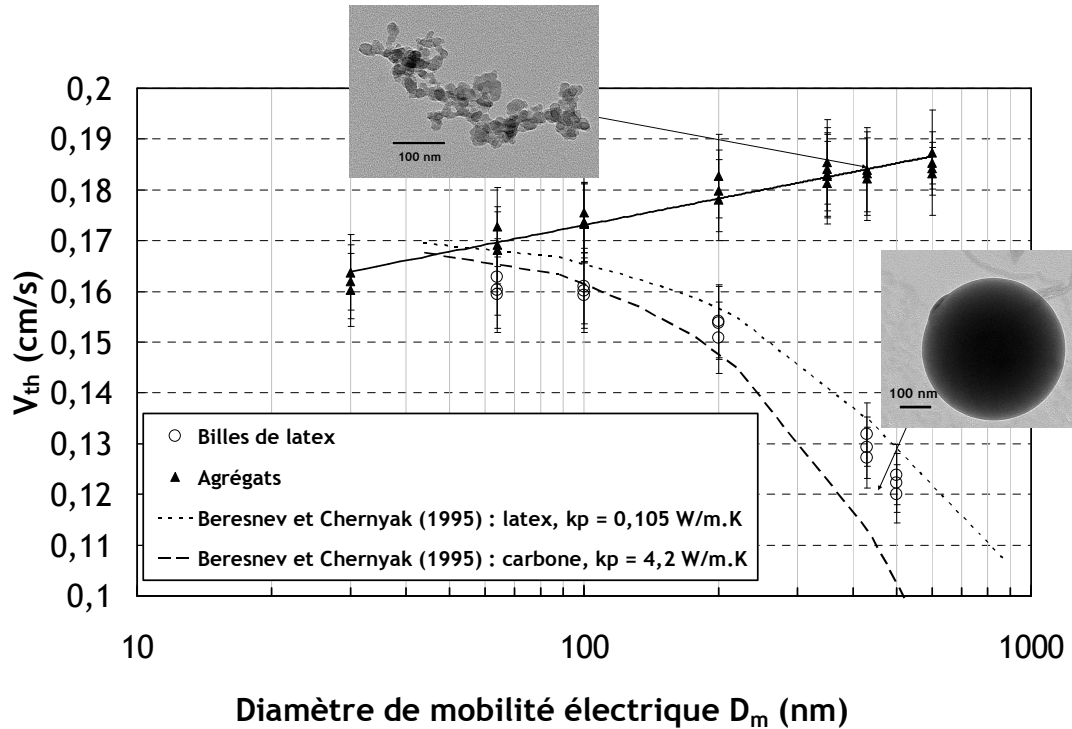


Figure 4.8 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse obtenue pour des particules sphériques (billes de latex) avec les résultats obtenus pour des agrégats de suies de combustion pour un gradient de température de 50 750 K/m.

Nous présentons sur la figure 4.9 la comparaison entre les résultats obtenus pour des billes de latex et ceux obtenus avec les agrégats en fonction du nombre de Knudsen. Nous avons présenté dans le chapitre 1 que le nombre de Knudsen permet de définir la continuité du milieu (Figure 1.5) à partir de la relation 1.3. Cependant, le nombre de Knudsen est directement dépendant du libre parcours moyen et de la dimension caractéristique de l'agrégat utilisée. Sur la figure 4.9, le nombre de Knudsen est calculé en fonction du diamètre de mobilité électrique et le libre parcours moyen est calculé à la température moyenne de la plaque chaude et de la plaque froide.

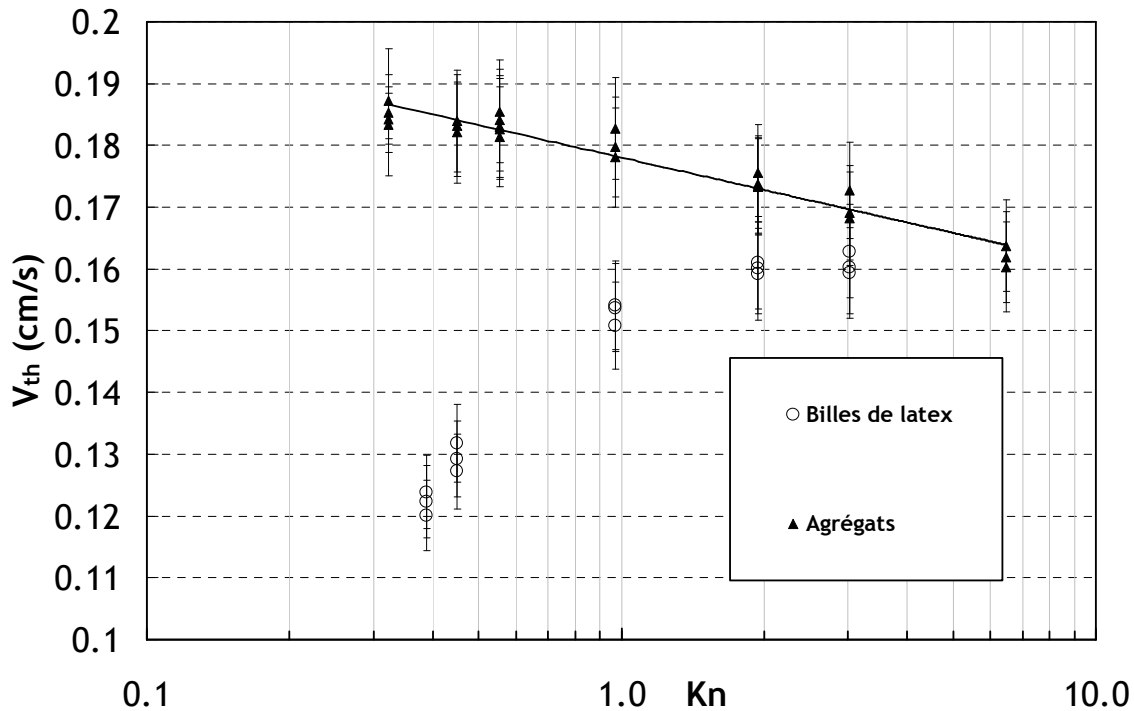


Figure 4.9 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse obtenue pour des particules sphériques (billes de latex) avec les résultats obtenus pour des agrégats de suies de combustion pour un gradient de température de 50 750 K/m, en fonction du nombre de Knudsen.

Nous représentons sur la figure 4.10 l'évolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de mobilité électrique. Le nombre de Knudsen est calculé à trois températures :

- température de la plaque chaude,
- température de la plaque froide,
- température moyenne des deux plaques.

On remarque sur la figure 4.10 une dépendance significative du nombre de Knudsen avec la température. De plus, celui-ci est également dépendant de la dimension caractéristique choisie. Nous représentons sur la figure 4.11, les valeurs minimales et maximales du domaine de nombres de Knudsen calculé à la température moyenne des plaques et pour trois dimensions caractéristiques de l'agrégat :

- le diamètre de mobilité électrique D_m ,
- le diamètre de giration D_g ,
- la longueur maximale projetée de l'agrégat.

La longueur maximale projetée définie par la relation :

$$L = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} D_g = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} \left(\frac{N_{pp}}{k_f} \right)^{1/D_f} \cdot D_{pp} \quad (4.1)$$

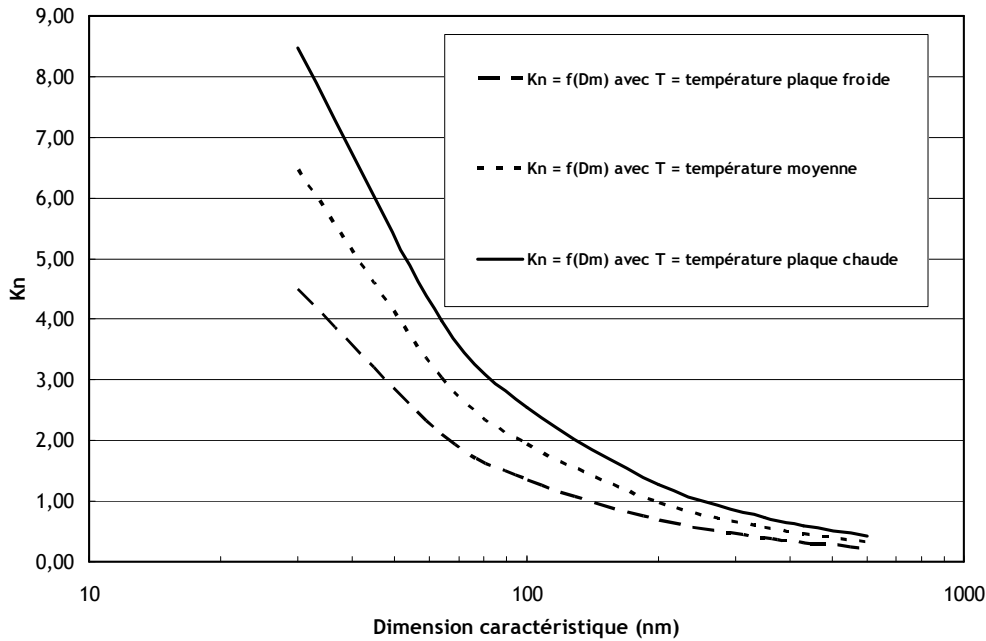


Figure 4.10 : Evolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de mobilité électrique, pour trois températures (plaque chaude, plaque froide et température moyenne).

La figure 4.11 montre que le choix de la dimension caractéristique permettant de caractériser un agrégat a une grande influence sur le nombre de Knudsen permettant de définir la continuité du milieu. Cependant, on remarque que ce choix a principalement une influence sur les nombres de Knudsen supérieurs à 1. De plus on observe que, indépendamment de la dimension caractéristique et de la température choisie, nous obtenons toujours des nombres de Knudsen inférieurs à 10 et supérieurs à 0,1. Ainsi, l'ensemble des agrégats étudiés dans le cadre de notre étude se trouve dans le régime intermédiaire.

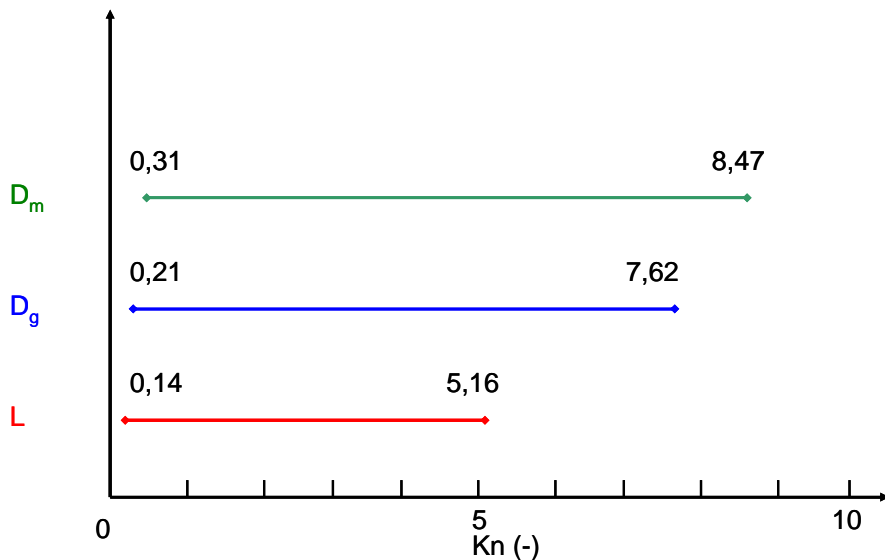


Figure 4.11 : Evolution du nombre de Knudsen en fonction des diamètres caractéristiques (diamètre de mobilité électrique, diamètre de giration et longueur maximale projetée).

De ces résultats, nous pouvons en conclure que les modèles existant de thermophorèse, par la seule utilisation d'un diamètre équivalent, ne décrivent pas le comportement thermophorétique de ceux-ci. En effet, pour utiliser les modèles existant, il faut considérer un diamètre équivalent à une sphère (le diamètre de mobilité électrique dans le cas des valeurs calculées de la figure 4.8) et l'ensemble des modèles montrent une diminution de la vitesse de thermophorèse avec l'augmentation du diamètre caractérisant la particule. Hors, les figures 4.8 et 4.9 montrent

clairement que la vitesse d'un agrégat augmente lorsque son diamètre augmente. Ces diamètres équivalents ne semblent pas suffisants pour prendre en compte parfaitement l'influence de la morphologie de l'agrégat sur leur vitesse de thermophorèse, ce qui explique en partie l'écart observé entre la théorie et les résultats expérimentaux. Nous allons, dans la suite de ce chapitre, essayer de trouver quel paramètre morphologique de l'agrégat, autre qu'un diamètre équivalent, peut justifier l'augmentation de la vitesse de thermophorèse et l'écart observé avec les résultats des billes de latex.

4.2.2. Influence du nombre de particules primaires de l'agrégat sur la vitesse de thermophorèse

Dans le chapitre 3, nous avons présenté les résultats de l'analyse morphologique des agrégats à l'aide du traitement des clichés par microscopie électronique. Ces informations nous ont permis d'obtenir la dimension fractale, le préfacteur fractal, le diamètre et le nombre de particules primaires des agrégats échantillonnés. Le résultat de cette analyse par microscopie électronique va nous permettre d'exprimer la vitesse de thermophorèse des agrégats en fonction, non plus de leur diamètre de mobilité électrique, mais en fonction de leur nombre de particules primaires correspondant.

Nous représentons dans la figure 4.12 les vitesses de thermophorèse obtenues pour les agrégats en fonction du nombre de particules primaires correspondant aux différents diamètres de mobilité électrique. La gamme du nombre moyen de particules primaires composant l'agrégat s'étend, dans le cadre de l'étude, de 2 particules primaires pour un diamètre de mobilité électrique de 30 nm à 2 380 particules primaires pour un diamètre de mobilité électrique égal à 600 nm. Ce nombre de particules primaires a été obtenu grâce au CPMA présenté dans le chapitre 3. Ce nombre moyen de N_{pp} est de 7 particules primaires pour un diamètre de mobilité électrique de 30 nm à 1 940 particules primaires pour un diamètre de mobilité électrique égal à 600 nm par la méthode d'analyse des images MET. Nous constatons une augmentation de la vitesse de thermophorèse en fonction du nombre de particules primaires, cette augmentation est principalement importante au dessous de 200 particules primaires. Lors de nos essais, il a été impossible de mesurer une vitesse de thermophorèse pour des agrégats de tailles inférieures à 30 nm et donc descendre sous un nombre moyen de particules primaires inférieurs à 2. Afin de déterminer la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire isolée, nous avons sur la figure 4.12 représenté un ajustement de forme simple (puissance) permettant d'exprimer la vitesse de thermophorèse des agrégats en fonction du nombre de particules primaires. Cet ajustement est de la forme :

$$V_{th} = 0,1621 \cdot N_{pp}^{0,0183} . \quad (4.2)$$

Avec l'équation 4.2, nous sommes capable d'extrapoler la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire isolée avec $N_{pp} = 1$, ce qui donne une vitesse égale à 0,1621 cm/s. La relation 4.2 devient donc :

$$V_{th} = V_{th,pp} \cdot N_{pp}^{0,0183} , \quad (4.3)$$

où $V_{th,pp}$ représente la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire en cm/s.

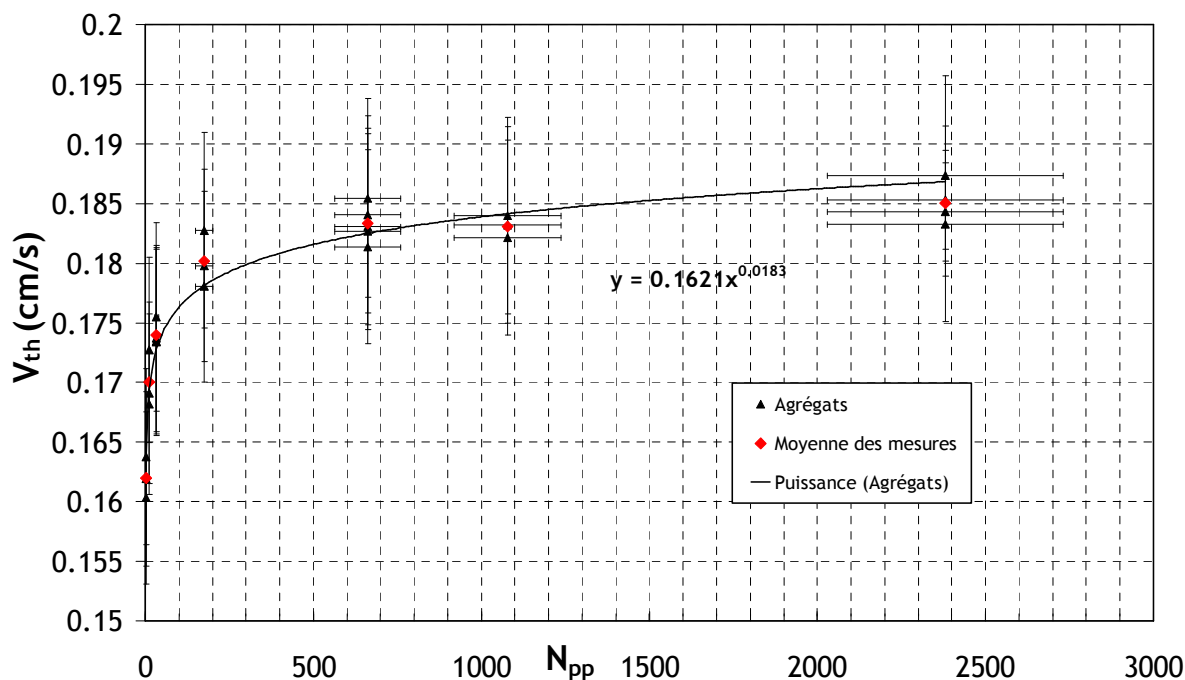


Figure 4.12 : Evolution de la vitesse de thermophorèse des agrégats de suies de combustion en fonction du nombre de particules primaires composant l'agrégat pour un gradient de température égal à 50 750 K/m.

Nous représentons sur la figure 4.13 une comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse obtenue pour des agrégats de suies de combustion et le modèle de Mackowski (2006) qui est le seul modèle de la littérature exprimant la vitesse de thermophorèse d'agrégats en fonction du nombre de particules primaires. Dans son article, Mackowski exprime le rapport de la vitesse de thermophorèse d'un agrégat sur la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire isolée en fonction du nombre de particules primaires de l'agrégat qu'il fait varier de 1 à 3000.

Afin de comparer nos valeurs au modèle de Mackowski, nous présentons sur la figure 4.13 le rapport de la vitesse expérimentale de thermophorèse $V_{th,mes}$ des agrégats sur la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire de l'agrégat $V_{th,pp}$. Nous avons choisi dans le papier de Mackowski la courbe représentant la vitesse de thermophorèse des agrégats avec la morphologie fractale la plus proche des agrégats traités dans le cadre de notre étude. Les caractéristiques morphologiques des agrégats représentés sur la figure 4.13 sont récapitulées dans le tableau 4.2.

Tableau 4.2 : Caractéristiques des agrégats présentés en figure 4.9

Légende	D_{pp} (nm)	D_f	K_f
Agrégats (CAST)	19,7	1,69	2,8
Mackowski (2006)	10-30	1,8	2,2

Pour calculer la vitesse de thermophorèse d'une particule primaire, nous allons émettre certaines hypothèses.

Dans un premier temps, Mackowski exprime dans son papier la vitesse de thermophorèse des particules primaires en utilisant le modèle de Waldmann qui est le modèle normalement utilisé dans la littérature pour exprimer les vitesses des particules sphériques dans le régime moléculaire. Pour rappel, le modèle de Waldmann s'exprime par la relation :

$$V_{thwa} = K_{wa} \frac{\eta_g}{\rho_g T_g} \nabla T, \text{ avec } K_{wa} = -\frac{3}{4} \frac{1}{1 + \frac{\pi}{8}}. \quad (4.4)$$

De la même manière nous avons calculé, pour nos conditions expérimentales, la vitesse de thermophorèse de la particule primaire grâce à la relation de Waldmann en calculant la viscosité dynamique, la masse volumique et la température du gaz à la température moyenne plaque chaude/plaque froide du SMTC. Nous obtenons ainsi une $V_{th,pp}$ égale à 0,1767 cm/s. Le rapport $V_{th,mes}/V_{th,pp}$ ainsi obtenu est inférieur aux résultats issus du modèle de Mackowski. Cependant, pour nos conditions expérimentales, on obtient pour un diamètre de particule primaire égal à 19,7 nm un nombre de Knudsen égal 9,85. Ce nombre de Knudsen signifie que le régime moléculaire n'est pas parfaitement atteint ($Kn < 10$). En conséquence il est possible que l'on surestime la vitesse de thermophorèse de la particule primaire en utilisant la modèle de Waldmann.

Nous présentons également dans la figure 4.13 le rapport $V_{th,mes}/V_{th,pp}$ en exprimant $V_{th,pp}$ par le biais de nos résultats expérimentaux. En effet $V_{th,pp}$ peut être déduite de la relation 4.2 qui exprime l'évolution de la vitesse de thermophorèse mesurée pour les agrégats dans le cadre de notre étude en fonction du nombre de particules primaires les caractérisant.

Un récapitulatif des vitesses de thermophorèse déterminées pour une particule primaire d'agrégat est présenté dans le tableau 4.3.

Tableau 4.3 : Récapitulatif des vitesses de thermophorèse considérées pour une particule primaire de l'agrégat.

	$V_{th} (D_{pp})$ en cm/s
Ajustement (Cf. 4.12)	0,1621
Walmann	0,1767

Dans la figure 4.13, le rapport $V_{th,mes}/V_{th,pp}$ expérimental avec l'utilisation d'une vitesse de thermophorèse d'une particule primaire isolée calculée grâce à l'extrapolation est supérieur aux résultats issus de la simulation Monte-Carlo de Mackowski. On obtient ainsi une vitesse de thermophorèse supérieure de 12 à 16 % pour un agrégat composé de 2 380 particules primaires et un écart de 3 à 8 % avec le modèle de Mackowski pour ce même agrégat. Mackowski justifie l'augmentation de la vitesse de thermophorèse avec le nombre de particules primaires par une augmentation du nombre de réflexion moléculaire sur l'agrégat, la surface de l'agrégat augmentant lorsque N_{pp} augmente. Il y a des différences de caractéristiques morphologiques (D_f et K_f) entre les agrégats issus de nos résultats expérimentaux et les agrégats issus du modèle de Mackowski. Or, celui-ci ne montre pas d'influence de ces paramètres sur la vitesse de thermophorèse des agrégats pour de faibles D_f . Cependant, l'écart observé entre nos valeurs et le modèle de Mackowski peut être justifiée par les hypothèses prises par celui-ci dans le développement de son modèle. Si Mackowski impose une orientation aléatoire de son agrégat par rapport au gradient de température (position de départ), il considère que l'agrégat est figé et ne prend pas une orientation préférentielle au cours de sa migration thermophorétique. Or, Mackowski (1990) montre que lorsqu'un agrégat composé de deux sphères est soumis à un gradient de température, l'agrégat tend à s'orienter parallèlement au gradient de température. Garcia-Ybarra et Rosner(1989) et Rosner *et al.* (1991) ont montré que la forme d'une particule et son orientation dans le gradient de température avait une influence sur sa vitesse de thermophorèse. Ainsi Rosner *et al.* (1991) montrent qu'un agrégat sous forme de « chaîne » a une vitesse de thermophorèse supérieure à celle d'une particule primaire isolé lorsque l'agrégat est orienté parallèlement au gradient de température et, au contraire, a une vitesse de thermophorèse inférieure à celle d'une particule primaire isolé lorsque l'agrégat est orienté perpendiculairement au gradient de température. La différence entre nos résultats expérimentaux et le modèle de Mackowski tend à montrer que nos agrégats s'orientent bien parallèlement au gradient de température lors de leurs migration thermophorétique et atteignent ainsi une vitesse de thermophorèse supérieure à celle prédite par le modèle de Mackowski.

On peut également se poser la question du recouvrement partiel des particules primaires et de son impact sur la vitesse de thermophorèse, hypothèse non prise en compte par le modèle de Mackowski qui considère la liaison entre les particules primaires comme étant un point de contact, ce qui n'est le cas pour des agrégats issus de suies de combustion.

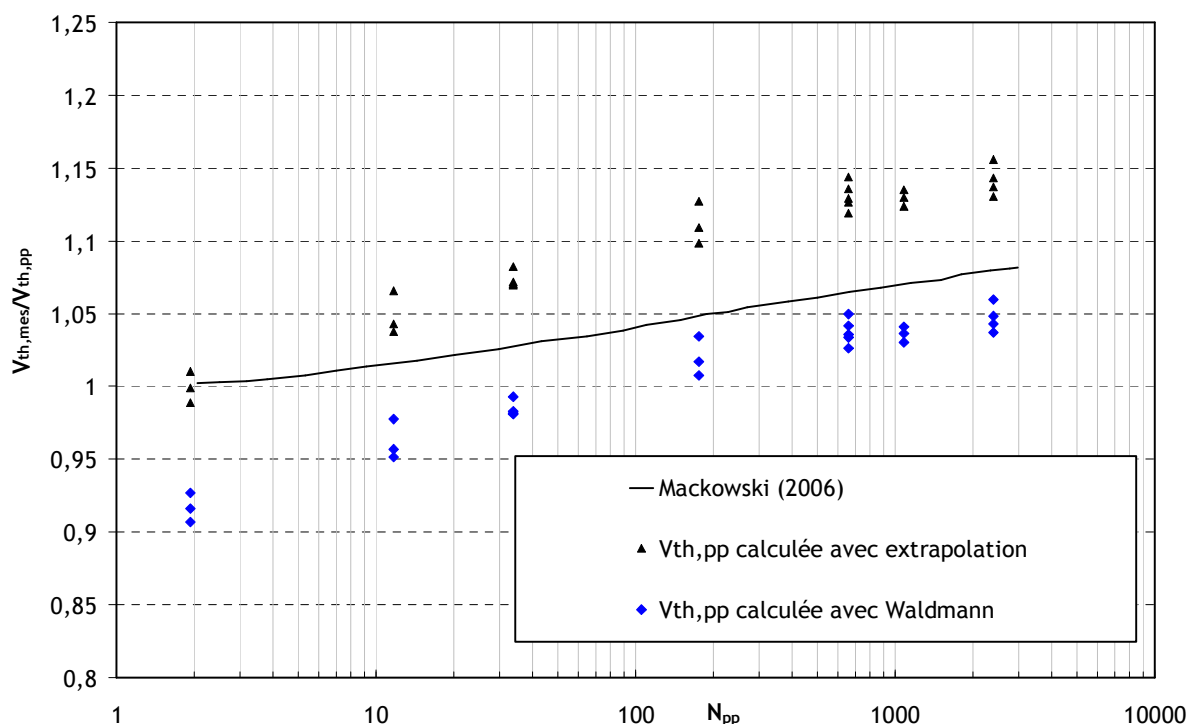


Figure 4.13 : Comparaison entre la détermination expérimentale de la vitesse de thermophorèse obtenue pour des agrégats de suies de combustion pour un gradient de température de 50 750 K/m et le modèle de Mackowski (2006)

Nous comparons, sur la figure 4.14 nos résultats expérimentaux avec ceux de Messerer *et al.* (2003) obtenus avec le générateur PALAS GFG 1000. Messerer *et al.* (2003) ne mentionnant pas dans leurs travaux la morphologie fractale des agrégats, les résultats sont présentés dans un premier temps en fonction du diamètre de mobilité électrique des agrégats, celui-ci variant entre 34 et 300 nm. Nous représentons sur la figure 4.14 l'évolution du coefficient de thermophorèse des agrégats au lieu de la vitesse de thermophorèse. En effet, les essais de Messerer n'ont pas été réalisés dans les mêmes conditions de températures que nos essais, l'utilisation du coefficient K_{th} permet de s'affranchir des différences dans les conditions opératoires. Ce coefficient de thermophorèse est calculé à partir de la relation 1.40 avec une masse volumique, une viscosité dynamique, un coefficient de thermophorèse et la température T_g calculés à la température moyenne de la plaque chaude et de la plaque froide. Le K_{th} calculé correspond ainsi à un coefficient de thermophorèse moyen.

Nous remarquons que l'évolution du coefficient de thermophorèse K_{th} des agrégats est la même, à savoir une augmentation (de même que la pour la vitesse de thermophorèse, voir figure 4.8) avec le diamètre de mobilité électrique. Cette augmentation peut être exprimée par une loi en puissance à la fois pour nos essais et pour ceux de Messerer, ce qui est aussi en accord avec les résultats reportés sur la figure 4.12. Nous observons cependant une différence entre nos résultats et ceux de Messerer pour des diamètres inférieurs à 100 nm.

Afin de mieux interpréter les résultats de Messerer, nous avons déterminé le nombre de particules primaires correspondant aux diamètres de mobilité électrique présentés par Messerer. Ce nombre de particules primaires a été obtenu en mesurant la masse des particules produites dans les conditions similaires proposées dans l'étude de Messerer. Cette masse a été mesurée grâce au CPMA, présenté dans le chapitre 3.1.4.6. Le nombre de particules primaires est déduit de cette masse à partir de la relation 3.22, avec une masse volumique des agrégats issus du générateur GFG 1 000 égale à 2 000 Kg/m³ (Wentzel *et al.* 2003) et un diamètre de moyen en masse des particules primaires calculé à partir de la relation 3.20 et égal à 7 nm.

La comparaison entre nos résultats et ceux de Messerer est présentée sur la figure 4.15. Nous observons un bon accord entre les coefficients de thermophorèse obtenus pour les agrégats issus du CAST et ceux issus du GFG 1 000. Dans le cadre de notre étude, les agrégats produits par le CAST ont un diamètre de particules primaires médian en nombre égal à 19,7 nm alors que ceux produits par le GFG 1000 ont un diamètre de particules primaires médian en nombre égal à 6 nm (Messerer *et al.*, 2003). Cette différence de taille des particules primaires, au vu des résultats présentés sur la figure 4.15, ne semblent pas avoir une influence sur la vitesse de thermophorèse des agrégats.

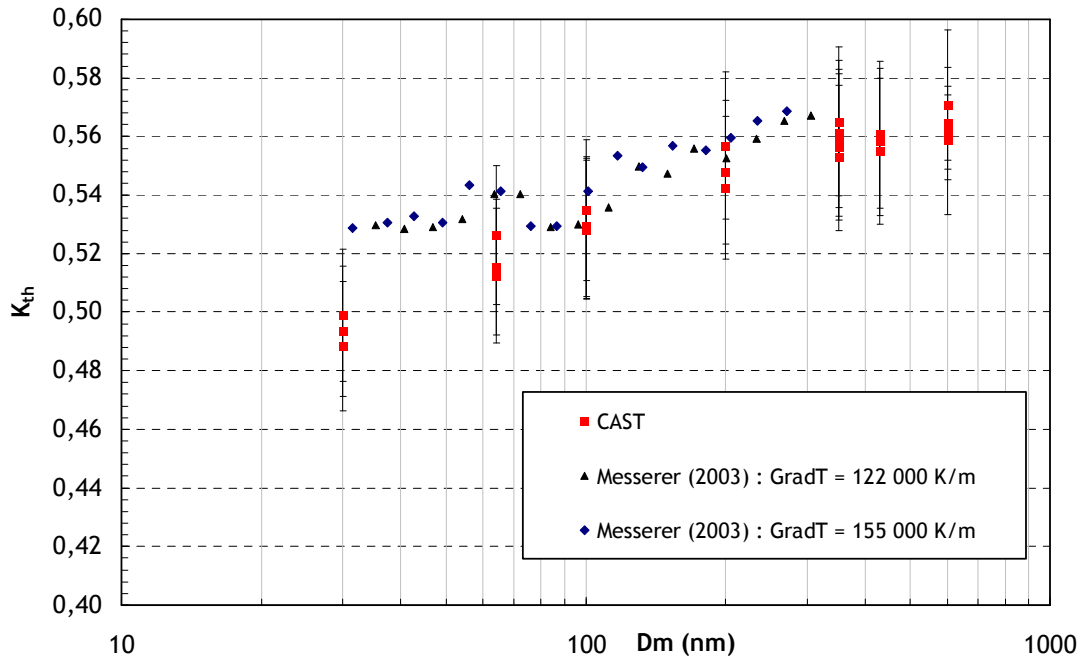


Figure 4.14 : Comparaison entre les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement pour les agrégats issus du CAST et ceux obtenus par Messerer *et al.* (2003) avec le GFG 1000, en fonction du diamètre de mobilité électrique.

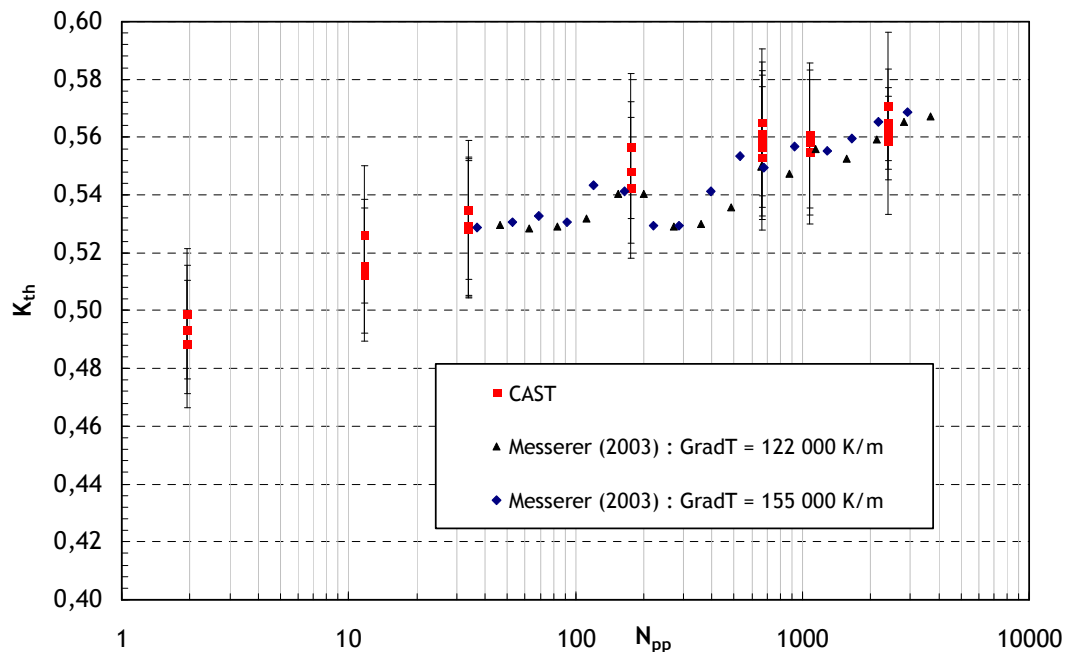


Figure 4.15 : Comparaison entre les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement pour les agrégats issus du CAST et ceux obtenus par Messerer *et al.* (2003) avec le GFG 1000, en fonction du nombre de particules primaires.

4.2.3. Influence de la force de traînée sur la vitesse de thermophorèse d'un agrégat

Nous avons vu dans le premier chapitre, que la vitesse de thermophorèse d'une particule sphérique ou non sphérique résulte de l'équilibre entre la force de thermophorèse s'exerçant sur la particule et la force de traînée s'opposant à son mouvement. Nous allons, dans cette section, nous intéresser à l'influence que la force de traînée peut avoir sur la vitesse de thermophorèse d'un agrégat.

La force de traînée pour une particule sphérique est bien connue et s'exprime sur l'ensemble des valeurs du nombre de Knudsen et dans le cas où la particule est soumise à la seule force de thermophorèse par la relation :

$$F_T = \frac{3\pi\eta_g D_p}{Cu(D_p)} V_{th}, \quad (4.5)$$

où D_p est le diamètre de la particule et V_{th} la vitesse de thermophorèse.

Dans le cas des agrégats, l'étude de la force de traînée va dépendre du régime d'écoulement. Ainsi en régime moléculaire, l'approche la plus simple consiste à supposer que chaque particule constituant l'agrégat voit l'écoulement indépendamment des autres. Friedlander (2000) émet ainsi la suggestion que pour le régime moléculaire et pour des agrégats peu compacts ($D_f < 2$), le bombardement moléculaire est identique sur chaque monomère sans dépendre de la taille ou de la forme de l'agrégat. Ainsi, la force de traînée d'un agrégat de N_{pp} monomères est de la forme :

$$F_{T,Friedlander} = N_{pp} \frac{3\pi\eta_g D_{pp}}{Cu(D_{pp})} V_{th}, \quad (4.6)$$

où D_{pp} est le diamètre de la particule primaire.

Toujours dans le régime moléculaire, Chan et Dahneke (1981) proposent, par le biais d'une simulation Monte-Carlo, que la force de traînée d'un agrégat en forme de chaîne de sphères ($N_{pp} > 12$) s'exprime par :

$$F_{T,Chan} = C^* \cdot N_{pp} \frac{\eta_g D_{pp}}{Kn} V_{th}, \quad (4.7)$$

où C^* représente la force de traînée adimensionnée des chaînes de sphères et dépend de la réflexion des molécules à la surface de la particule. Ainsi lorsque l'agrégat est orienté aléatoirement, C^* est égal 9,34 pour des réflexions diffuses et égal 6,85 pour des réflexions spéculaires. Dahneke (1982) propose, afin de calculer la force de traînée d'un agrégat en forme de chaîne que la réflexion des molécules à la surface de la particule est 7 % spéculaire et 93 % diffuse, ce qui conduit à une valeur de C^* de 9,17.

Mackowski (2006), à l'aide de simulation Monte-Carlo sur des agrégats générés numériquement avec D_f compris entre 1,7 et 2 propose une expression du diamètre hydrodynamique d'un agrégat en fonction de la taille et du nombre des particules primaires pour des agrégats avec un nombre de particules primaires compris entre 1 et 3 000. Ce diamètre hydrodynamique est défini comme le diamètre d'une sphère ayant la même force de traînée que l'agrégat. Ce diamètre hydrodynamique D_h est exprimé selon la relation :

$$D_h = D_{pp} 1,624 \cdot k_f^{-1/3 \cdot D_f} D_f^{-0,9} N_{pp}^{0,47}. \quad (4.8)$$

Il n'existe pas, dans la littérature, d'expressions pour représenter la force de traînée dans le domaine intermédiaire. On peut cependant, à partir de la relation connue pour les particules sphériques (4.5), exprimer la force de thermophorèse d'un agrégat, sur l'ensemble des nombres de Knudsen, en attribuant à la particule un diamètre équivalent (diamètre de mobilité électrique ou diamètre hydrodynamique de Mackowski par exemple).

La relation 4.5 devient donc :

$$F_{T,agrégat} = \frac{3\pi\eta_g D_{\text{équivalent}}}{Cu(D_{\text{équivalent}})} V_{th} \cdot \quad (4.9)$$

Pour le régime continu, Binder *et al.* (2006) arrivent à une expression de la force de traînée d'un agrégat dépendant de la force de traînée d'un monomère et du nombre de particules primaires :

$$F_{T,Binder} = F_{T,pp} \frac{3}{4} N_{pp}^{0,63} \cdot \quad (4.10)$$

En considérant l'agrégat comme une sphère poreuse, Garcia-Ybarra *et al.* (2006) proposent une relation analytique pour la force de traînée d'une sphère avec une structure fractale dans le domaine continu et s'exprime selon la relation :

$$F_{T,agrégat} = F_{T,pp} \cdot \frac{Cu(D_{pp})}{Cu(L)} \frac{L}{D_{pp}} \left[1 - P^{1/2} - P \left(\frac{3 + \delta}{2 + \delta} - \frac{3 - D_f}{4} \right) \right], \quad (4.11)$$

où P est la perméabilité de l'agrégat et s'exprime d'après Garcia-Ybarra *et al.* (2006) par la relation :

$$P = \frac{2}{3,6(1-\varepsilon)(L/D_{pp})^2} \ll 1, \quad (4.12)$$

où ε représente la porosité et L la longueur maximale projetée de l'agrégat. Les grandeurs L et ε seront définies dans la partie 4.2.4 de ce chapitre. Le paramètre est défini par Garcia-Ybarra *et al.* (2006) par la relation :

$$\delta \equiv \frac{D_f}{2} \left[\sqrt{1 + \frac{8(3 - D_f)}{D_f^2}} - 1 \right]. \quad (4.13)$$

Nous représentons sur la figure 4.16 l'évolution de la force de traînée adimensionnée (force de traînée d'un agrégat sur la force de traînée d'une particule primaire) en fonction du nombre de particules primaires pour les différentes expressions de la force de traînée données ci-dessus. Dans un premier temps, nous constatons que la force de traînée des agrégats augmente avec le nombre de particules primaires, mais de façon sensiblement différente selon l'approche abordée. Ainsi les relations correspondant au régime moléculaire (relation 4.6 et 4.7) donnent les forces de traînées des agrégats les plus élevées. Au contraire, la relation de Binder *et al.* (2006) valable pour le régime continu, donne la force de traînée la plus faible. Bien que peu visible sur la figure 4.8, les valeurs de forces de traînées données par les relations 4.5 à 4.11 sont très proches pour des agrégats composés de moins de 30 particules primaires. Dans un second temps, on remarque que le choix d'un diamètre de mobilité électrique pour exprimer la force de traînée d'un agrégat est très proche de celle utilisant le diamètre hydrodynamique de Mackowski (2006) qui, par utilisation de la relation 4.8, donne des diamètres hydrodynamique proche des diamètres de mobilité électrique.

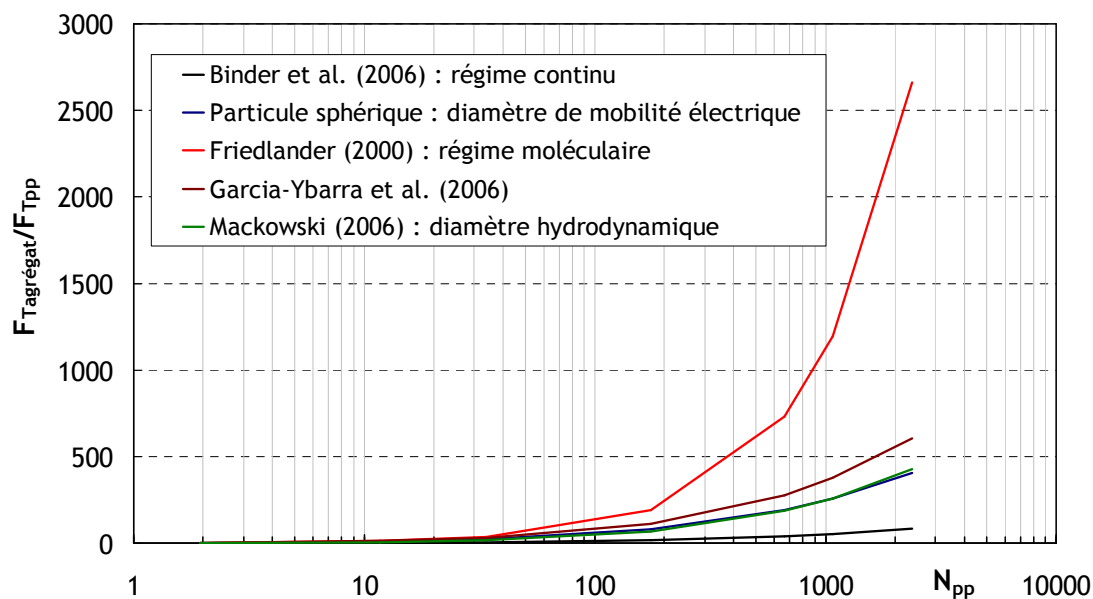


Figure 4.16 : Evolution de la force de traînée adimensionnée (force de traînée d'un agrégat sur la force de traînée d'une particule primaire) en fonction du nombre de particules primaires.

Nous comparons dans la figure 4.17 les vitesses expérimentales de thermophorèse obtenues pour les agrégats avec le modèle de Talbot pour différentes expressions de la force de traînée, en fonction du nombre de particules primaires. Contrairement au modèle de Beresnev où une modification de la force de traînée est peu triviale, le modèle de Talbot nous permet facilement d'inclure une force de traînée modifiée. Nous observons aisément sur la figure 4.17 que les expressions de la force de traînée issues des relations 4.6, 4.9 et 4.10 ne permettent pas de calculer correctement la vitesse de thermophorèse des agrégats. Bien qu'on observe une augmentation de la vitesse de thermophorèse des agrégats en fonction du nombre de particules primaires comme constatés dans la section 4.2.2 en utilisant la relation de Binder, l'écart observé est très important.

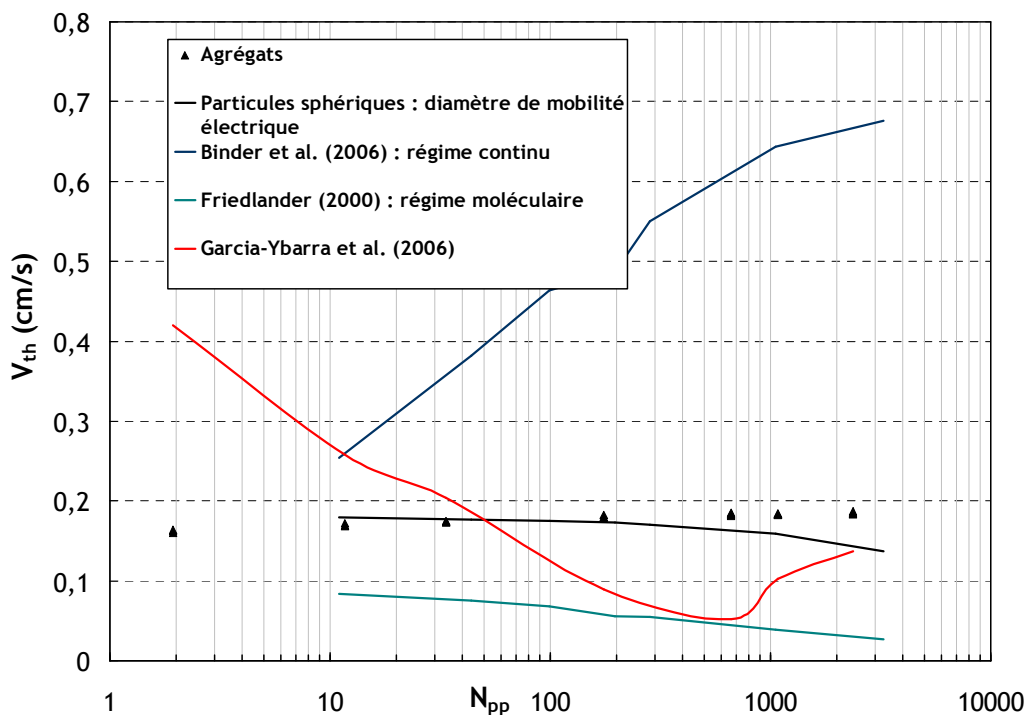


Figure 4.17 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse obtenues avec le modèle de Talbot mais pour différentes expressions de la force de traînée, en fonction du nombre de particules primaires.

Nous avons étudié, dans cette section, l'influence de la force de traînée sur la vitesse de thermophorèse des agrégats. En comparant nos résultats expérimentaux au modèle de Talbot en incluant les différentes expressions de la force de traînée disponible dans la littérature, on arrive au constat que la seule modification de la force de traînée dans l'expression de la vitesse de thermophorèse ne permet pas de justifier l'écart observé entre les agrégats et les billes de latex. De ce constat on peut donc se poser la question de savoir si la prise en compte de la morphologie des agrégats dans la force de thermophorèse peut justifier cet écart.

4.2.4. Détermination de la porosité d'un agrégat

Nous avons vu dans le premier chapitre que les formules disponibles dans la littérature pour exprimer la vitesse ou la force de thermophorèse sont toujours dépendantes d'un diamètre (géométrique ou diamètre équivalent) de la particule. Cependant, dans la partie 4.2.2, nous avons montré une augmentation de la vitesse de thermophorèse en fonction du nombre de particules primaires composant l'agrégat. En conséquent, nous allons dans cette partie essayer de faire un rapprochement entre la morphologie fractale des agrégats et les diamètres équivalent pouvant les caractériser, ceci afin de justifier la différence observée entre le comportement thermophorétique de particules sphériques et les agrégats. En d'autres termes, on se pose la question de savoir si on peut appliquer les lois de la thermophorèse établies et validées pour des sphères au cas des agrégats. La réponse nécessite de connaître les propriétés équivalentes aux sphères.

Nous allons donc nous poser la question de la porosité des agrégats et de son impact sur leur comportement thermophorétique, notamment en termes de conductivité thermique, paramètre influant sur la force et la vitesse de thermophorèse des sphères.

4.2.4.1. Hypothèse de la longueur maximale projetée

Nous allons, dans cette section, définir la notion de porosité pour un agrégat et la méthode adoptée pour exprimer cette porosité en fonction du nombre de particules primaires de l'agrégat.

Un agrégat de dimension fractale de l'ordre 2 n'est pas matériau poreux au sens strict du terme, du fait qu'il a une structure très ouverte. Mais de nombreuses études utilisent cette notion de matériaux poreux pour exprimer la perméabilité d'un agrégat en vue notamment de déterminer l'influence de leur morphologie fractale sur la force de traînée. Parmi ces études on peut citer les travaux de Krupitczka (1967), Rosner et Tandon (1994), Veerapaneni et Wiesner (1996), Vanni (2000), Chernyakov (2001) ou encore Kim et Yuan (2005). Dans ces études, les auteurs considèrent l'agrégat comme une sphère avec une porosité homogène.

D'une manière générale, la porosité est définie par la relation :

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_{\text{particule}}}{\rho_{\text{carbone}}}, \quad (4.14)$$

où la masse volumique de la particule (agrégat dans notre étude) s'exprime simplement par la relation :

$$\rho_{\text{particule}} = \frac{m_{\text{particule}}}{V_{\text{particule}}}, \quad (4.15)$$

où $m_{\text{particule}}$ et $V_{\text{particule}}$ représentent la masse et le volume de la particule.

En considérant l'agrégat comme une sphère, il nous faut donc établir un diamètre équivalent de l'agrégat pour déterminer le volume de la particule. Pour cela nous allons introduire dans un premier temps le diamètre de la sphère circonscrite et son lien avec la longueur maximale projetée L définie d'après la loi fractale par la relation :

$$L = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} D_g = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} \cdot \left(\frac{N_{pp}}{k_f} \right)^{1/D_f} \cdot D_{pp}, \quad (4.16)$$

où le rayon de giration D_g est une dimension caractéristique de la distribution de la masse au sein de l'agrégat. Une représentation schématique d'un agrégat avec son cercle circonscrit et sa longueur maximale projetée L est faite sur la figure 4.18. La principale difficulté dans cette approche est de déterminer la masse de la particule. En considérant que cette masse résulte seulement de la matière solide de l'agrégat (dans notre cas du carbone), la masse de l'agrégat compris dans le cercle circonscrit correspond donc à la somme des masses des particules primaires. Nous avons donc :

$$m_{\text{particule}} = N_{pp} \cdot \frac{\pi}{6} \cdot D_{pp}^3 \cdot \rho_{\text{carbone}}. \quad (4.17)$$

En définissant le volume de la particule en fonction de la longueur maximale projetée par la relation :

$$V_{\text{particule}} = \frac{\pi}{6} \cdot L^3, \quad (4.18)$$

on arrive à l'expression suivante de la masse volumique de la particule :

$$\rho_{\text{particule}} = k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f - 3} \cdot \left(\frac{D_f}{D_f + 2} \right)^{3/2} \cdot \rho_{\text{carbone}} \quad (4.19)$$

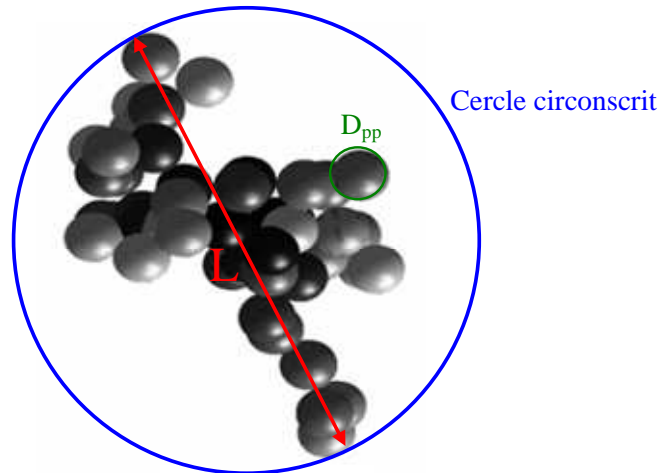


Figure 4.18 : Représentation d'un agrégat avec son cercle circonscrit et sa longueur maximale projetée

En reprenant la relation 4.14 et 4.16, l'expression de la porosité de l'agrégat s'exprime donc par la relation :

$$\varepsilon_L = 1 - k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f - 3} \cdot \left(\frac{D_f}{D_f + 2} \right)^{3/2}, \quad (4.20)$$

où encore, en fonction du nombre de particule primaire :

$$\varepsilon_L = 1 - k_f^{D_f} \cdot (N_{pp})^{D_f - 3} \cdot \left(\frac{D_f}{D_f + 2} \right)^{3/2}. \quad (4.21)$$

D'après la relation 4.21, nous constatons une invariance de la porosité de l'agrégat avec le diamètre des particules primaires, le rapport vide/matière dépend uniquement de la morphologie fractale et du nombre de particules primaires.

4.2.4.2. Hypothèse du diamètre de giration

Une autre approche peut être réalisée pour déterminer la porosité de l'agrégat, on considère le diamètre de giration D_g de l'agrégat.

De la même manière que pour l'hypothèse de la longueur maximale projetée, nous pouvons définir un volume de la particule correspondant au diamètre de giration :

$$V_{particule} = \frac{\pi}{6} \cdot D_g^3. \quad (4.22)$$

En conservant les hypothèses de la relation 4.19, la masse volumique de l'agrégat s'exprime, en fonction du diamètre de giration par la relation :

$$\rho_{particule} = k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f - 3} \cdot \rho_{carbone}. \quad (4.23)$$

Les relations 4.14 et 4.23 nous permettent d'exprimer la porosité d'un agrégat en fonction de son diamètre de giration :

$$\varepsilon_{D_g} = 1 - k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f - 3}, \quad (4.24)$$

soit en fonction du nombre de particules primaires de l'agrégat :

$$\varepsilon_{D_g} = 1 - k_f^{D_f} \cdot (N_{pp})^{D_f - 3}. \quad (4.25)$$

L'ensemble des grandeurs utilisées pour la détermination de la porosité d'un agrégat en fonction de sa longueur maximale projetée ou de son diamètre de giration est représenté dans le tableau 4.4. Le nombre de particules primaires correspond aux agrégats étudiés dans le cadre de nos travaux est également représenté dans ce tableau.

Tableau 4.4 : Récapitulation des grandeurs utilisées pour déterminer la porosité d'un agrégat

D_m (nm)	D_g (nm)	L (nm)	$N_{ppmin} < \overline{N_{pp}} < N_{ppmax}$ (déterminé avec le CPMA)
30	33	49	1,6 < 1,9 < 2,2
64	77	114	10 < 12 < 13
100	126	186	29 < 34 < 39
200	271	400	149 < 175 < 201
350	504	743	564 < 662 < 759
430	632	932	920 < 1079 < 1238
600	913	1348	2029 < 2380 < 2731

Nous représentons sur la figure 4.19, l'évolution de la porosité d'un agrégat en fonction du nombre de particule primaire le caractérisant, d'après les relations 4.21 et 4.25. Nous avons pris pour les dimensions fractales et préfacteurs utilisés dans les relations 4.21 et 4.25, ceux correspondant aux agrégats étudiés lors de nos essais qui sont reportés dans le tableau 4.2, soit D_f égal à 1,7 et K_f égal à 2,8. Nous pouvons remarquer une importante augmentation de la porosité de l'agrégat avec le nombre de particule primaire pour les agrégats correspondant à nos essais. En effet, pour des agrégats composés de plus de 100 particules primaires, la porosité calculée est supérieure à 0,9. Ce résultat s'explique par les relations 4.21 et 4.25 qui montrent que la porosité des agrégats est dépendante de la dimension fractale. Hors, les agrégats étudiés dans le cadre de nos travaux ont une dimension fractale égale à 1,7, ce qui en fait des agrégats très aérés. Ainsi, la porosité aurait une valeur bien moindre pour des agrégats avec une dimension fractale proche de trois (agrégat très compact). On peut également noter que la notion de porosité n'a plus vraiment de sens pour des agrégats avec un nombre réduit de particules primaires ($N_{pp} < 10$).

On peut également remarquer l'influence du choix du diamètre caractérisant l'agrégat sur la porosité de celui-ci. Ainsi, on obtient un écart significatif du calcul de la porosité en fonction du paramètre D_g ou L pour des agrégats avec un nombre de particules primaires inférieurs à 1000, et plus particulièrement pour des agrégats composés de moins de 100 particules primaires. Au-delà de 1000 particules primaires les porosités de l'agrégat calculées en fonction de D_g ou de L sont très proches.

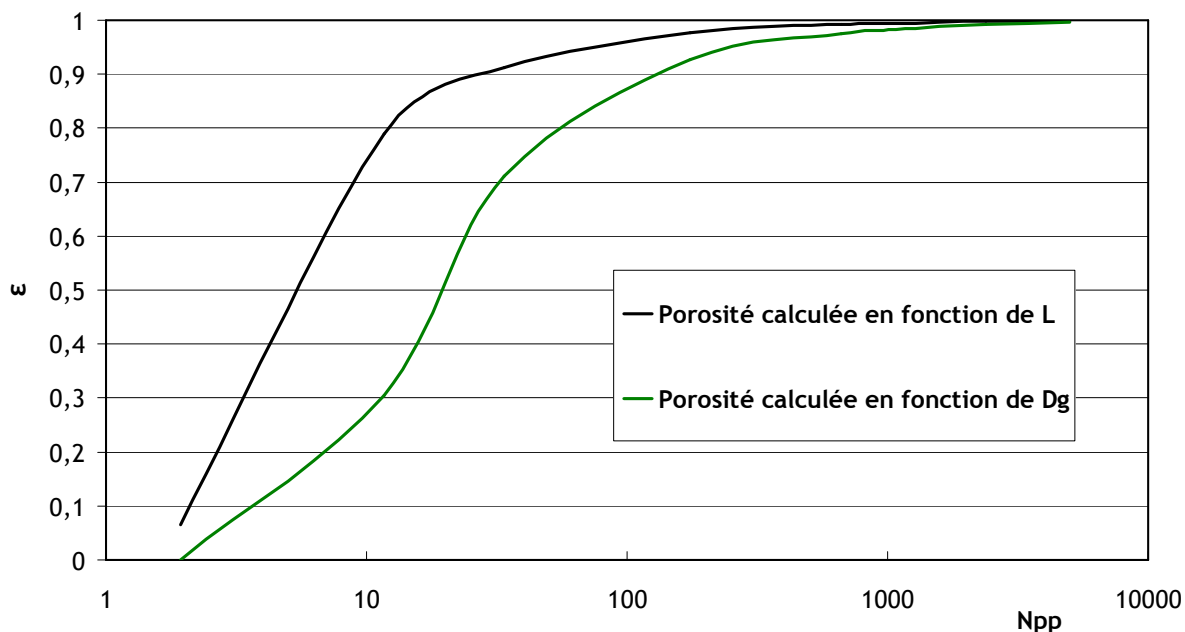


Figure 4.19 : Evolution de la porosité d'un agrégat en fonction du nombre de particule primaire.

4.2.5. Influence de la conductivité thermique de l'agrégat sur sa vitesse de thermophorèse

4.2.5.1. Détermination d'une conductivité thermique effective pour un agrégat

Dans le premier chapitre, nous avons montré que la force ou la vitesse de thermophorèse pour une particule sphérique est fortement dépendante du ratio entre la conductivité thermique du gaz et de la particule k_g/k_p , notamment dans le domaine continu. Nous avons également montré que les agrégats peuvent être caractérisés par un diamètre équivalent comme un diamètre aérodynamique, un diamètre de giration ou un diamètre de mobilité électrique.

Dans la logique d'une approche 'matériau poreux', il faut connaître la conductivité thermique effective. Rosner et Khalil proposent de déterminer une conductivité thermique effective de l'agrégat en tenant compte du ratio de volume de gaz et de carbone compris dans le rayon de giration de l'agrégat. Pour des agrégats ayant une dimension fractale égale à 1,7 ils trouvent un ratio de conductivité thermique k_g/k_{eff} , où k_{eff} est la conductivité thermique effective de l'agrégat, compris entre 0,47 et 1 (Tandon et Rosner, 1995). Les auteurs conseillent par la suite de prendre un ratio k_g/k_p égal à 1 afin d'obtenir une bonne estimation du comportement thermophorétique des agrégats. Les travaux expérimentaux de Messerer *et al.* (2003), présentés sur la figure 4.20 confirment cette hypothèse. Sur la figure 4.20, Messerer représente les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement par une méthode de dépôt sur des agrégats issus du générateur PALAS GFG 1000. On remarque une faible augmentation du coefficient de thermophorèse avec l'augmentation de la taille des particules (diminution du nombre de Knudsen). Messerer compare ses résultats avec les modèles de Waldmann et de Talbot. Pour le modèle de Talbot, il fait varier la conductivité thermique de l'agrégat qui prend respectivement la valeur de 5 W/K.m (graphite et trait épais sur la figure 4.20), 0,2 W/K.m (valeur pour le carbone donnée par Khizhnyak *et al.*, 1979, trait fin sur le graphique) et $k_p = k_g$ (pointillé). On remarque que pour des valeurs de conductivité thermique de la particule k_p supérieures à celle du gaz, l'expression de Talbot tend à sous estimer la valeur du coefficient de thermophorèse obtenu pour les agrégats. Au contraire, Messerer conclue que les valeurs expérimentales du coefficient de thermophorèse sont proches des résultats du modèle de Talbot lorsqu'on prend l'hypothèse d'un ratio de conductivité thermique k_g/k_p égal à 1. Ceci confirme bien l'hypothèse que la conductivité thermique d'un agrégat doit tenir compte de la présence d'air dans la particule.

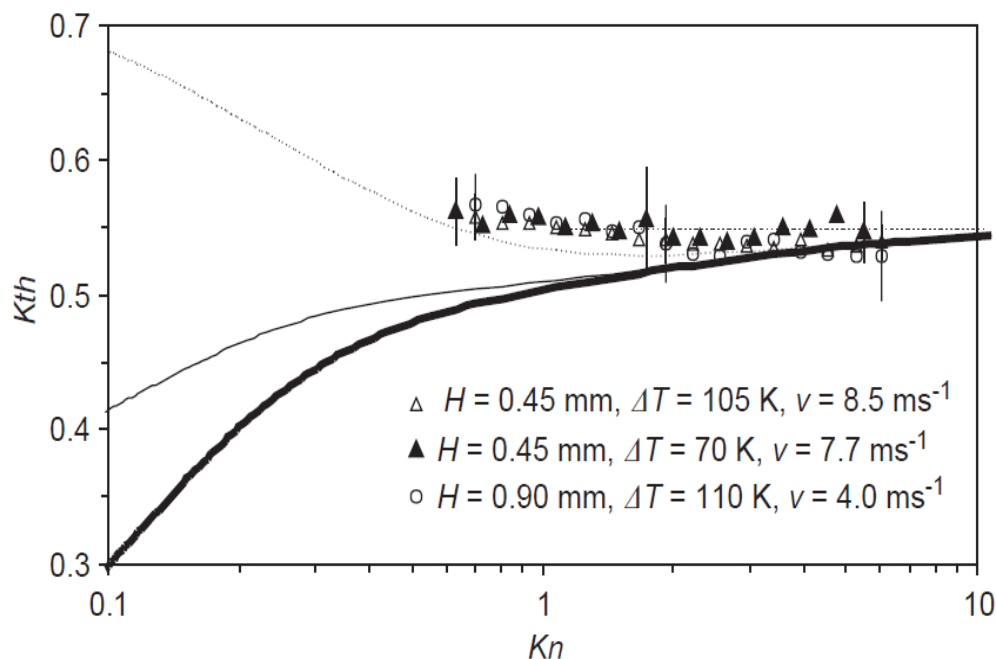


Figure 4.20 : Comparaison entre les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement et le modèle de Waldmann (ligne pointillée horizontale) et le modèle de Talbot. Pour ce dernier, différents ratio de conductivité thermique k_g/k_p sont utilisés (0,0064 trait fin, 0,16 trait épais et 1 pointillé), Messerer *et al.* (2003).

Les travaux de Rosner et Khalil (2000) et Messerer *et al.* (2003) ont montré qu'en prenant une conductivité thermique de l'agrégat égale à celle du gaz, le coefficient de thermophorèse d'un agrégat tendait vers le modèle de Talbot pour des faibles nombres de Knudsen. On se propose d'approfondir ce constat en utilisant les porosités déterminées dans la section 4.2.4 pour exprimer une conductivité thermique effective des agrégats étudiés.

En posant l'hypothèse que l'agrégat est un matériau poreux, la littérature propose différentes relations pour exprimer la conductivité thermique de matériaux poreux.

Tavman (1996) fait un inventaire des relations existantes pour exprimer les conductivités thermiques effectives de matériaux granuleux poreux. Nous prendrons, dans le cadre de notre étude, les valeurs minimales et maximales de conductivités thermiques effectives des matériaux granuleux poreux données par Tavman (1996).

La valeur minimale de conductivité thermique effective est donnée pour un matériau poreux dont les couches fluide/solide sont orientées perpendiculairement aux flux de chaleurs reçu par le matériau (figure 4.21). Cette valeur $K_{eff_{min}}$ s'exprime par la relation :

$$k_{eff_{min}} = \frac{k_{carbone} \cdot k_g}{\varepsilon k_{carbone} + (1-\varepsilon)k_g}, \quad (4.26)$$

où ε représente la porosité du matériau.

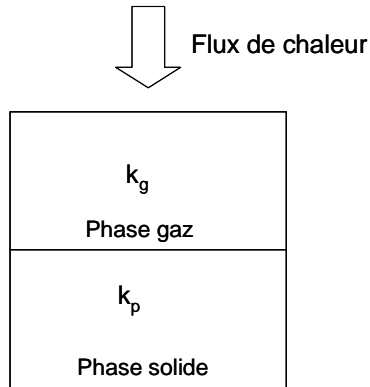


Figure 4.21 : Représentation d'un matériau poreux orienté perpendiculairement au flux de chaleur.

La valeur maximale de conductivité thermique effective est donnée pour un matériau poreux dont les couches fluide/solide sont orientées parallèlement aux flux de chaleurs reçu par le matériau (figure 4.22). Cette valeur k_{eff_max} s'exprime par la relation :

$$k_{eff_max} = \varepsilon(k_g) + (1 - \varepsilon)k_{carbone} \quad (4.27)$$

Les valeurs de conductivité thermique effective minimale et maximale données par Tavman seront comparées à la valeur donnée par Krupiczka (1967) qui considère un agrégat comme une sphère poreuse et détermine ainsi une conductivité thermique effective dépendant de la porosité de l'agrégat et s'exprimant selon la relation :

$$k_{eff_Kru.} = k_g \left(\frac{k_{carbone}}{k_g} \right)^{0,280 - 0,757 \log(\varepsilon) - 0,057 \log\left(\frac{k_{carbone}}{k_g}\right)} \quad (4.28)$$

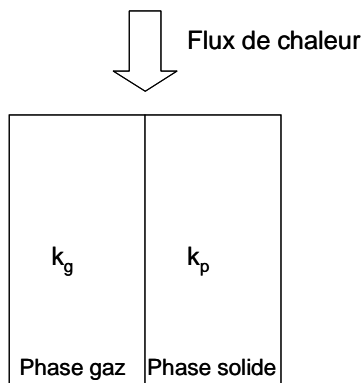


Figure 4.22 : Représentation d'un matériau poreux orienté parallèlement au flux de chaleur.

Nous représentons sur la figure 4.23 la conductivité thermique effective d'un agrégat et sur la figure 4.25 le rapport k_g/k_{eff} en fonction du nombre de particules primaires. Les porosités utilisées dans les relations 4.26 à 4.28 sont calculées par le biais de la relations 4.21 ce qui définit le volume de la particule par la longueur maximale projetée (avec une dimension fractale égale à 1,7). Sur les figures 4.24 et 4.26 les mêmes paramètres sont reportés mais en utilisant un volume de particule défini par son diamètre de giration.

Nous rappelons que, pour un faible nombre de particules primaires ($N_{pp} < 10$), la notion de porosité n'a pas de sens. Pour des agrégats plus gros mais avec un nombre de particules primaires inférieurs à 100, nous remarquons une forte influence de la porosité sur la conductivité thermique effective d'un agrégat calculée en fonction du diamètre de giration (4.24) et de la longueur maximale projetée (figure 4.23). La conductivité thermique effective de l'agrégat diminue fortement entre 10 et 100 particules primaires et atteint une valeur proche de celle du gaz (0,0337 W/Km) pour des agrégats composés de plus de 1 000 particules primaires.

La conductivité thermique effective minimale déterminé par la relation de Tavman et celle déterminé par la relation de Krupitczka sont très proche de celle du gaz, même pour des agrégats avec de faible nombre de particules primaires ($10 < N_{pp} < 100$).

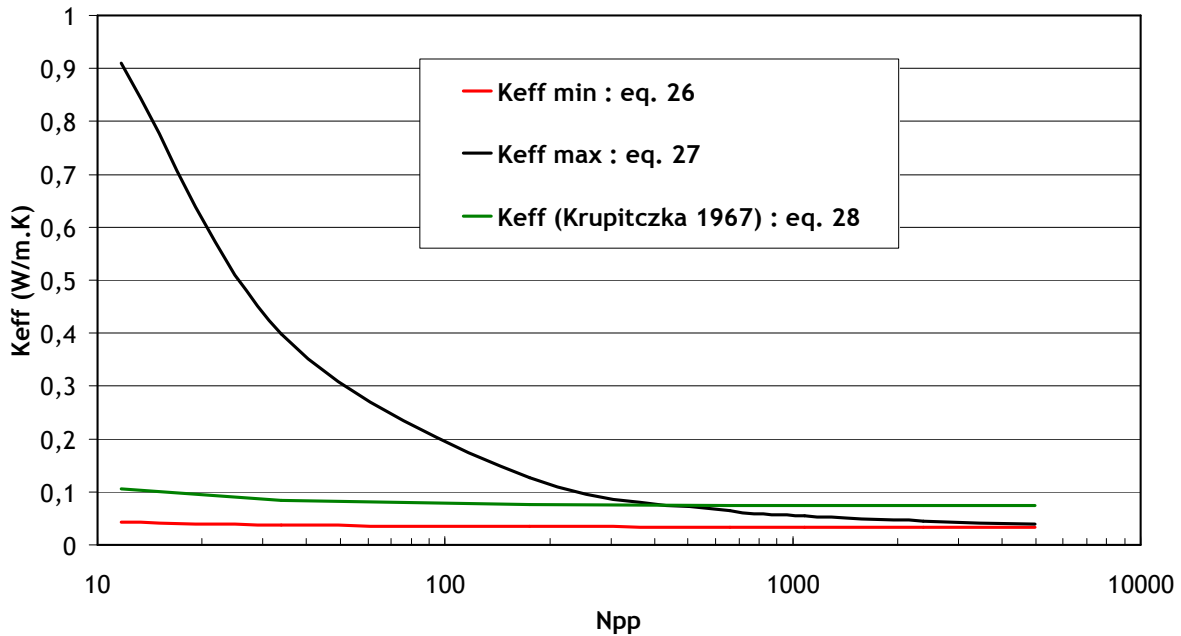


Figure 4.23 : Evolution de la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon la longueur maximale projetée, en fonction du nombre de particules primaires.

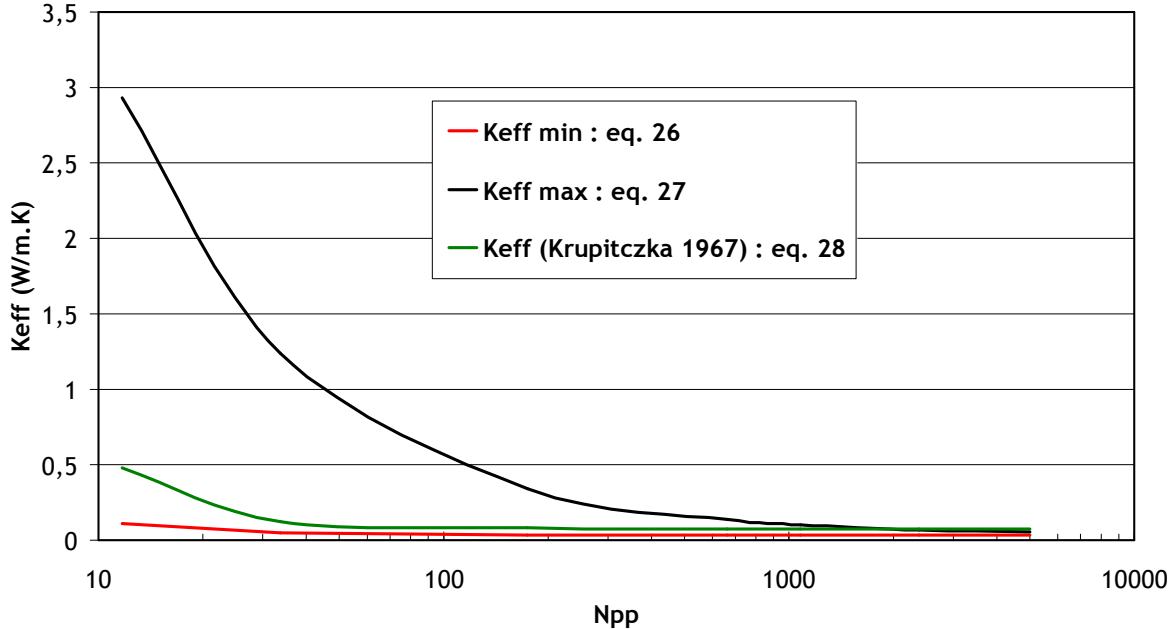


Figure 4.24 : Evolution de la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon le diamètre de giration, en fonction du nombre de particules primaires.

Nous remarquons sur les figures 4.25 et 4.26, où sont représentés le ratio k_g/k_{eff} que le ratio obtenu avec $k_{eff,min}$ est très proche de 1 pour des nombres de articles primaires supérieurs à 100. On remarque également que la valeur donnée par la relation de Kupritczka est très faible par rapport à la valeur donnée par $k_{eff,min}$.

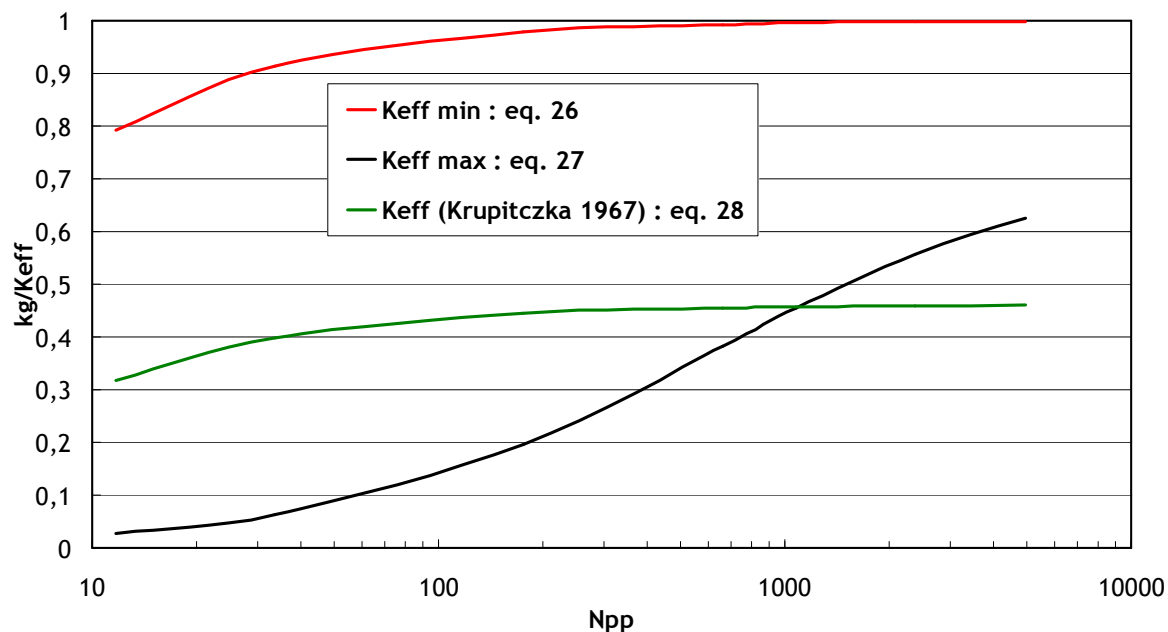


Figure 4.25 : Evolution du ratio de conductivité thermique du gaz sur la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon la longueur maximale projetée, en fonction du nombre de particules primaires, $k_g = 0,0337$ W/K.m.

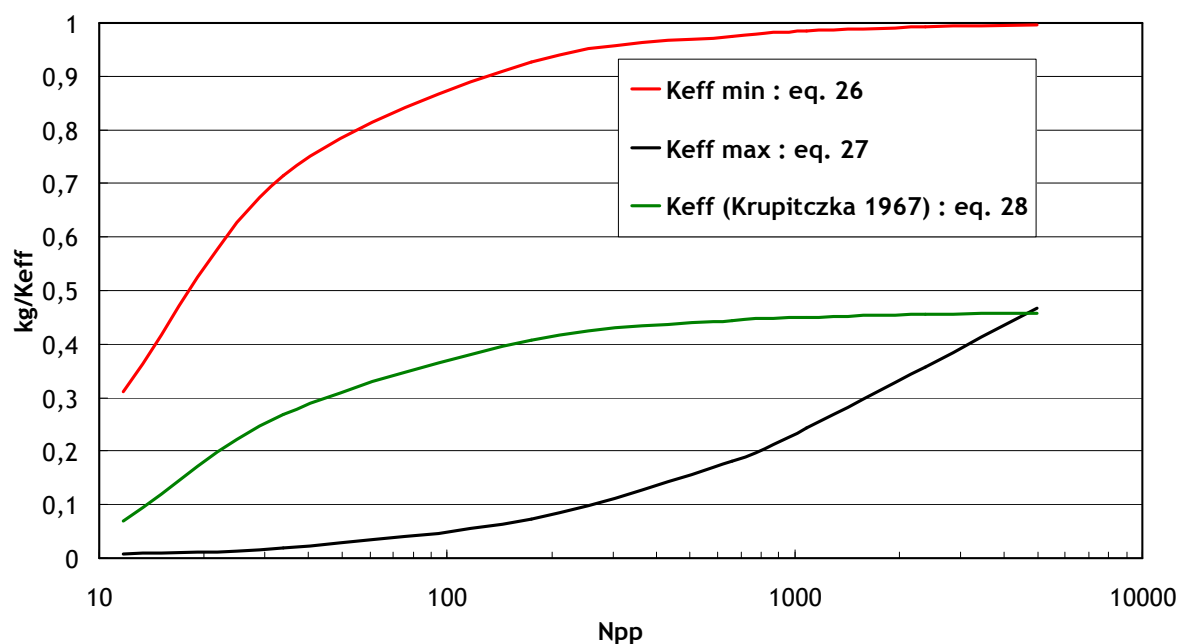


Figure 4.26 : Evolution du ratio de conductivité thermique du gaz sur la conductivité thermique effective d'un agrégat, exprimée selon le diamètre de giration, en fonction du nombre de particules primaires, $k_g = 0,0337$ W/K.m.

Nous avons fait l'hypothèse dans la section 4.2.4 de caractériser un agrégat comme une sphère poreuse. Nous avons montré que le choix d'un diamètre équivalent (diamètre de giration ou longueur maximale projetée) pour calculer la porosité d'un agrégat à faible dimension fractale (1,7) avait surtout une influence pour des agrégats composés de moins de 100 particules primaires. En effet pour des agrégats composés de plus de 100 particules primaires, on obtient des porosités calculées en fonction du diamètre de giration ou de la longueur maximale projetée très proche.

Ainsi, le choix du diamètre de giration ou de longueur maximale projetée pour calculer la conductivité thermique de l'agrégat semble principalement conséquent pour des agrégats composés de moins de 100 particules primaires.

4.2.5.2. Comparaison expérience/théories

Nous allons dans cette section comparer nos résultats expérimentaux avec les théories de Talbot et de Beresnev en incluant dans celles-ci la notion de conductivité thermique effective de l'agrégat. Nous prendrons, pour le modèle de Beresnev, des facteurs d'accommodation α_T et α_M égaux à 1.

Nous comparons sur les figures 4.27 et 4.28 les résultats expérimentaux avec la théorie de Talbot pour différentes conductivité thermique de l'agrégat. En premier lieu, nous représentons sur les figures 4.27 et 4.28 le modèle de Talbot calculé avec un ratio k_g/k_p égal à 1 et un ratio k_g/k_p égal à 0,008, ce qui correspond à une conductivité thermique de l'agrégat égale à celle du carbone graphite, soit 4,2 W/Km. La conductivité thermique de l'air k_g est constante dans l'ensemble des relations et égale à 0,0337 W/Km. Sur ces mêmes figures, nous avons aussi reporté les résultats obtenus avec le modèle de Talbot en tenant compte d'une conductivité thermique effective, pour une porosité déterminée en fonction de la longueur maximale projetée des agrégats (figure 4.27), pour une porosité déterminée en fonction du diamètre de giration des agrégats (figure 4.28).

Nous remarquons sur les figures 4.27 et 4.28 que le modèle de Talbot donne une bonne estimation de la vitesse de thermophorèse des agrégats avec l'utilisation de la conductivité thermique effective minimale proposé par Tavman. La vitesse de thermophorèse obtenue avec k_{eff_min} est très proche de la vitesse de thermophorèse obtenue avec un ratio k_g/k_p égal à 1, ce qui s'explique par des conductivités thermique effectives minimales proche de celle du gaz (cf. figures 4.25 et 4.26). Bien que ces valeurs de vitesses de thermophorèse soient proche des résultats expérimentaux (en prenant en compte les incertitudes), on peut cependant observer une double tendance avec les résultats déduits du modèle de Talbot. Ainsi, pour des agrégats composés de 10 à 100 particules primaires, on observe une très faible décroissance de la vitesse de thermophorèse des agrégats en fonction du nombre de particules primaires. Ce phénomène s'inverse pour des agrégats composés de plus de 100 particules primaires. Cette tendance est également observable sur la figure des résultats de Messerer (figure 4.20) lorsque celui-ci utilise un ratio k_g/k_{eff} égal pour le modèle de Talbot.

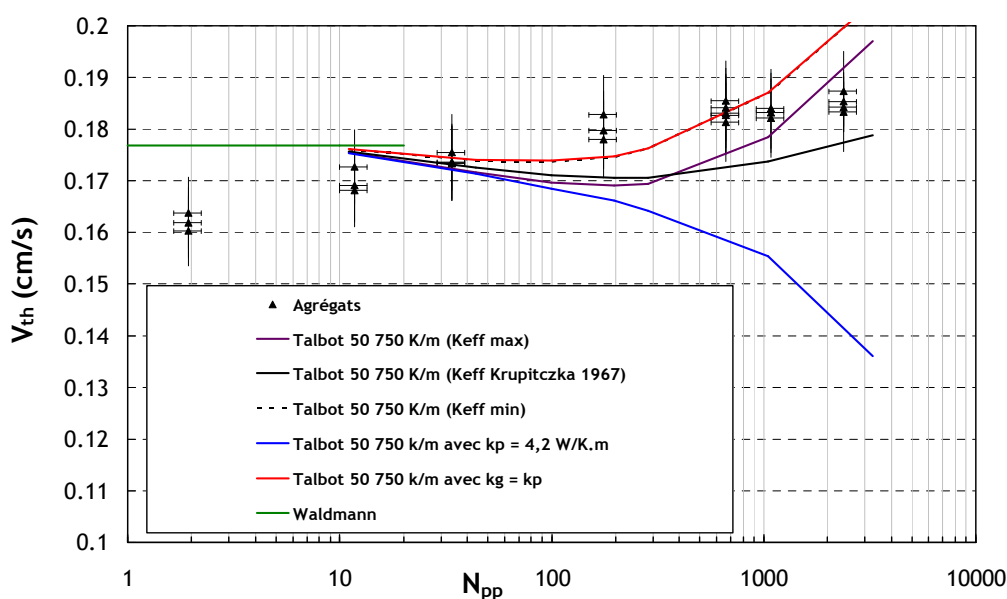


Figure 4.27 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Talbot pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction de la longueur maximale projetée de l'agrégat.

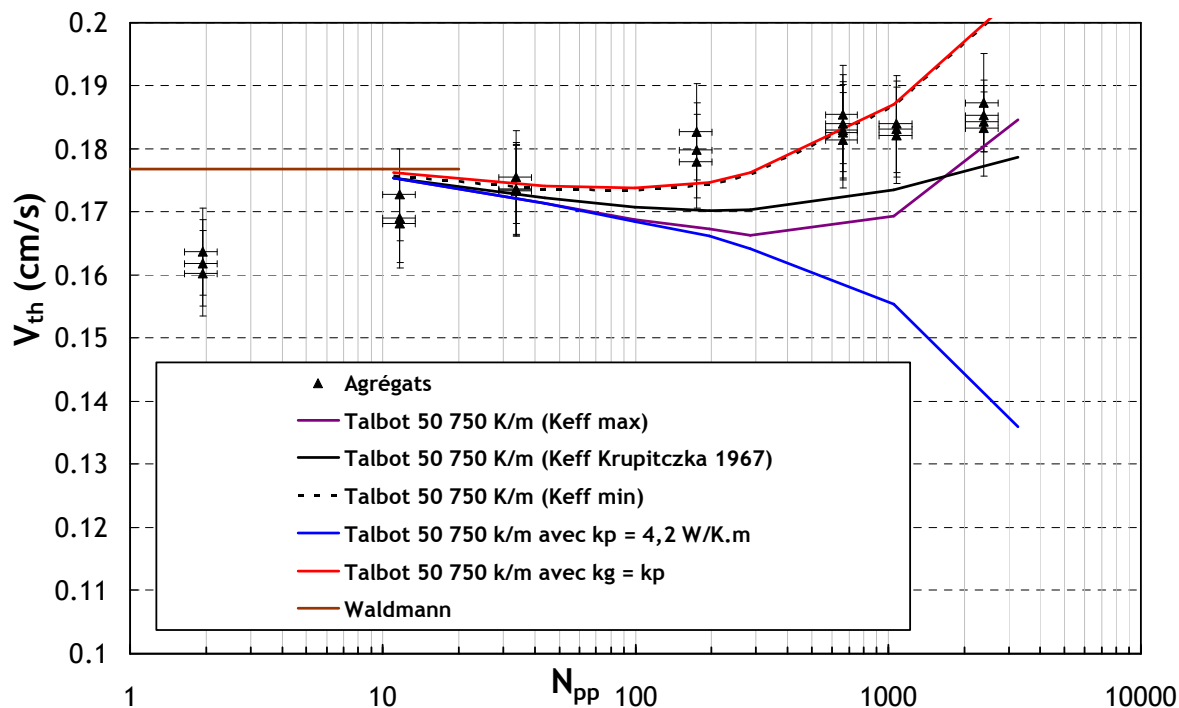


Figure 4.28 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Talbot pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction du diamètre de giration de l'agrégat.

Nous comparons sur les figures 4.29 et 4.30 les résultats expérimentaux obtenus pour les agrégats avec la théorie de Beresnev pour différentes conductivités thermiques de l'agrégat. Comme précédemment, nous représentons sur les figures 4.29 et 4.30 le modèle de Beresnev calculé avec un ratio k_g/k_p égal à 1 et un ratio k_g/k_p égal à 0,008.

Sur les mêmes figures, nous avons aussi reporté les résultats obtenus avec le modèle de Beresnev en tenant compte d'une conductivité thermique effective, pour une porosité déterminée en fonction de la longueur maximale projetée des agrégats (figure 4.29), pour une porosité déterminée en fonction du diamètre de giration des agrégats (figure 4.30).

Nous constatons sur les figures 4.29 et 4.30 que le modèle de Beresnev utilisant la conductivité thermique effective minimale proposé par Tavman donne une très bonne estimation de la vitesse de thermophorèse des agrégats. L'utilisation du $k_{eff_{min}}$ dans le modèle de Beresnev par l'approche du diamètre de giration (figure 4.30) permet même une meilleure estimation de la vitesse de thermophorèse des agrégats que par l'approche de la longueur maximale projetée (figure 4.29).

L'utilisation du modèle de Beresnev associée à une faible conductivité thermique effective permet d'obtenir une bonne estimation de la vitesse de thermophorèse des agrégats avec une faible dimension fractale. Ces résultats confirment l'approche théorique de Perea *et al.* (2007) qui inclut un facteur de correction dans l'expression de la vitesse de thermophorèse pour les agrégats.

Cependant, la notion de matériau poreux pour des agrégats très aérés (avec une dimension fractale inférieure à 2) est une hypothèse critiquable. En effet, le calcul des conductivités thermiques effectives proposées par Tavman ne sont pas théoriquement applicable au cas de ce type d'agrégats. Néanmoins, les résultats proposés sur les figures 4.27 à 4.30 suggèrent que la conductivité thermique du carbone, dans le cas des agrégats, semble négligeable dans la modélisation du comportement thermophorétique des agrégats.

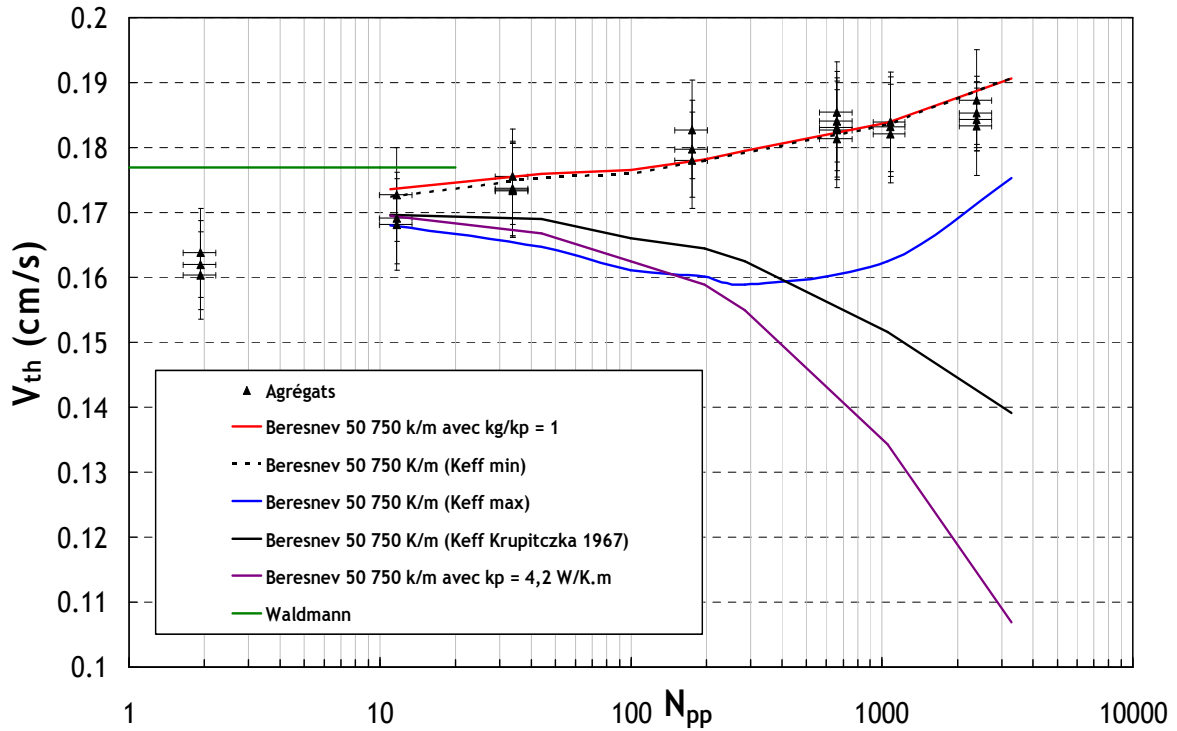


Figure 4.29 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Beresnev pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction de la longueur maximale projetée de l'agrégat.

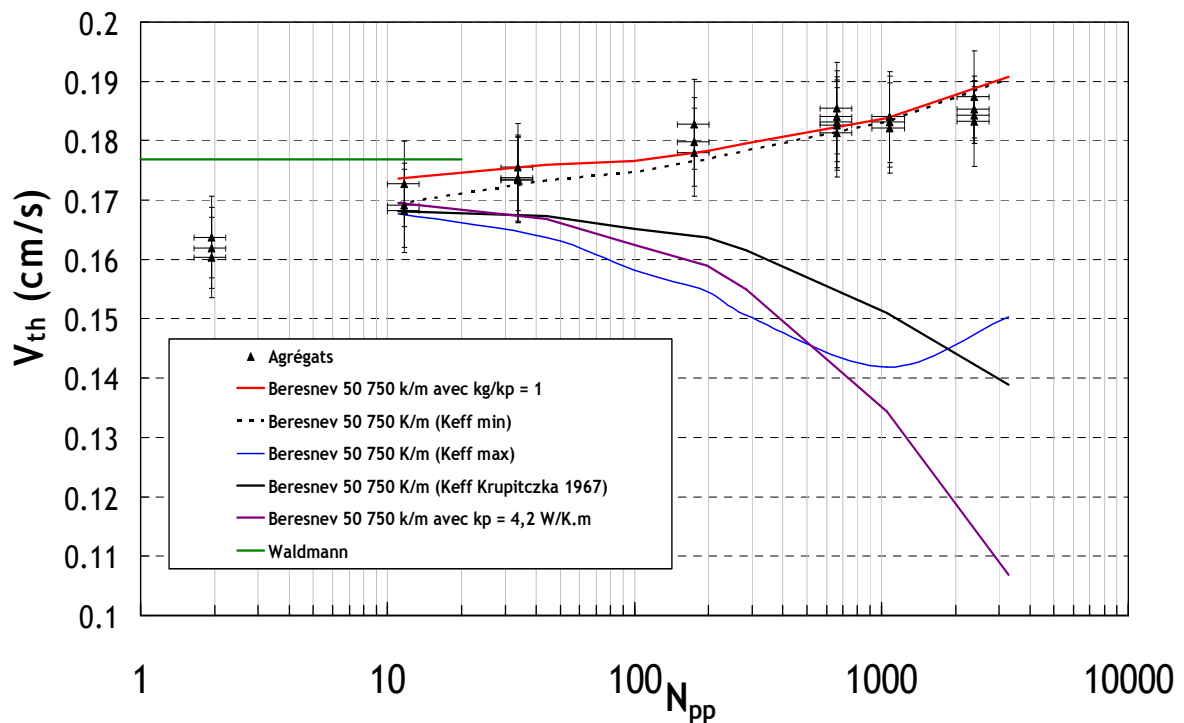


Figure 4.30 : Comparaison entre les vitesses de thermophorèse expérimentales des agrégats et la théorie de Beresnev pour différentes valeurs de conductivité thermique de l'agrégat, calculées en fonction du diamètre de rotation de l'agrégat.

4.2.6. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats expérimentaux sur la mesure des vitesses de thermophorèse de particules sphériques et non sphériques.

Dans un premier temps nous avons réalisé des essais avec des particules sphériques (billes de latex) dont le comportement thermophorétique est connu et expliqué par de nombreuses théories. Nous avons comparé nos résultats expérimentaux avec les différents modèles de vitesse de thermophorèse disponibles dans la littérature. Bien que largement utilisé pour l'évaluation de dépôts thermophorétique, le modèle de Talbot fournit toujours des valeurs de V_{th} plus élevées que celles déterminées par nos mesures, dans la gamme des diamètres de cette étude (64 à 500 nm). Par ailleurs, on constate que le modèle de Yamamoto et Ishihara (1988) sous-estime la valeur de la vitesse de thermophorèse, et ceci même lorsqu'on considère une version modifiée de ce modèle en prenant en compte une loi de traînée de type Millikan.

Nous obtenons un bon accord entre les vitesses de thermophorèse déterminées à partir de nos résultats expérimentaux et ceux obtenus par application du modèle de Beresnev et Chernyak (1995). Ces résultats confirment les conclusions de Li et Davis (1995), Prodi *et al.* (2007) et Sagot *et al.* (2009), cependant il s'est avéré que pour obtenir un bon accord entre nos mesures et la théorie de Beresnev, nous n'avons pas eu à choisir un coefficient d'accommodation thermique inférieur à 1, coefficient qui permet de prendre en compte l'interaction collisionnelle entre les molécules du gaz et la particule.

La comparaison de nos résultats expérimentaux avec les différents modèles de la vitesse de thermophorèse disponibles dans la littérature d'une part, et les travaux expérimentaux de Li et Davis (1995), Prodi *et al.* (2007) et Sagot *et al.* (2009) d'autre part, nous a permis de valider les mesures de vitesse de thermophorèse obtenues avec le SMTC pour des particules sphériques (billes de latex).

Dans un second temps, nous avons réalisé des essais avec les agrégats issus du générateur CAST. Une sélection de ces agrégats par un tandem DMA en entrée du SMTC nous a permis d'obtenir des vitesses de thermophorèse pour des agrégats quasi-monodispersés et pour des tailles de diamètre de mobilité électrique allant de 30 nm à 600 nm. En comparant les vitesses de thermophorèse des agrégats à celles obtenues avec les billes de latex, on remarque un écart significatif, pouvant atteindre 65 % entre une bille de latex et un agrégat de 500 nm. De plus, nous obtenons un comportement thermophorétique des agrégats inverse à celui des sphères. Ainsi nous remarquons une augmentation de la vitesse de thermophorèse des agrégats lorsque leur taille augmente.

Pour comprendre l'influence de la morphologie fractale des agrégats sur leur comportement thermophorétique, nous avons présenté l'évolution des vitesses de thermophorèse des agrégats en fonction du nombre de particules primaires. Nous remarquons que la vitesse de thermophorèse suit une loi de puissance et est fortement dépendante du nombre de particules primaires de l'agrégat. Nous avons comparé ces résultats avec le simulation Monte-Carlo de Mackowski (2006) qui a montré que bien qu'indépendante de la dimension fractale de l'agrégat, la vitesse de thermophorèse augmentait avec le nombre de particules primaires ce qui peut être justifié par une augmentation du nombre de réflexion moléculaire sur l'agrégat lorsque le N_{pp} augmente. Nous observons cependant un écart entre nos résultats et le modèle de Mackowski pouvant atteindre 9 %. Cependant, cette différence peut être justifiée par les hypothèses prises par Mackowski dans le développement de son modèle qui impose une orientation aléatoire de son agrégat par rapport au gradient de température (position de départ) et considère que l'agrégat est figé et ne prend pas une orientation préférentielle au cours de sa migration thermophorétique. La différence entre nos résultats expérimentaux et le modèle de Mackowski tend à montrer que nos agrégats pourraient s'orienter parallèlement au gradient de température lors de leurs migration thermophorétique et atteignent ainsi une vitesse de thermophorèse supérieure à celle prédite par le modèle de Mackowski. On peut également se poser la question du recouvrement des particules primaires et de son impact sur la vitesse de thermophorèse, hypothèse non prise en compte par le modèle de Mackowski qui considère la liaison entre les particules primaires comme étant un point de contact, ce qui n'est le cas pour des agrégats issus de suies de combustion.

Une comparaison avec les coefficients de thermophorèse obtenus expérimentalement par Messerer *et al.* (2003) sur des agrégats issus du générateur PALAS GFG 1000 montrent également une augmentation de la vitesse de thermophorèse des agrégats (sous forme de loi de puissance)

avec leurs tailles. Nous observons un bon accord entre nos résultats et ceux de Messerer malgré la différence de la taille des particules primaires entre les agrégats produits par le CAST et ceux produits par le GFG 1000. Cette différence pourrait donc signifier que la taille des particules primaires, pour des d_{pp} inférieurs à 20 nm, n'a pas un impact sur la vitesse de thermophorèse des agrégats.

Nous avons vu dans le premier chapitre que trois paramètres influent sur la vitesse de thermophorèse d'une particule, à savoir l'interaction molécule/particule, le ratio de la conductivité thermique du gaz sur celle de la particule et la force de traînée de la particule. Si dans le cadre d'un agrégat l'interaction molécule/particule peut se traduire par une augmentation de du nombre de réflexion moléculaire sur l'agrégat lorsque le N_{pp} augmente (Mackowski, 2006), on peut s'interroger sur la différence entre la conductivité thermique d'un agrégat et de sa force de traînée par rapport à une sphère et de l'influence de ces paramètres sur sa vitesse de thermophorèse.

En comparant nos résultats expérimentaux au modèle de Talbot en incluant les différentes expressions de la force de traînée disponible dans la littérature, on arrive au constat que la prise en compte de la morphologie des agrégats par ces modèles ne suffit pas à justifier l'écart observé entre les billes de latex et les agrégats.

En considérant l'agrégat comme une sphère poreuse, nous avons pu déterminer une porosité de l'agrégat en fonction de sa longueur maximale projeté ou de son rayon de giration. Cette porosité nous a permis, en utilisant les lois disponibles dans la littérature (Tavman, 1996 et Krupitczka, 1967), d'établir une conductivité thermique effective de l'agrégat dépendant de sa longueur maximale projeté ou de son rayon de giration. En intégrant ces conductivités thermiques effective dans les modèles de Beresnev et de Talbot, nous pouvons remarquer que l'utilisation du modèle de Beresnev associé une faible conductivité thermique effective permet d'obtenir une bonne estimation de la vitesse de thermophorèse d'agrégats de faible dimension fractale. Ces résultats confirment d'ailleurs l'approche théorique de Perea *et al.* (2007) qui incluent un facteur de correction dans l'expression de la vitesse de thermophorèse des agrégats.

CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

L'objectif de ce travail de recherche était d'améliorer la compréhension du dépôt des particules de combustion, par l'étude expérimentale du comportement des agrégats afin de prendre en compte l'influence de la morphologie des agrégats sur leur dépôt par effet thermophorétique. Les résultats obtenus au cours de cette étude peuvent être utilisés pour l'amélioration des modèles de dépôt actuellement utilisés par l'IRSN.

La première phase a consisté en une étude bibliographique. Celle-ci a d'abord permis de faire une synthèse des connaissances et relations disponibles dans la littérature pour exprimer le phénomène de thermophorèse pour des particules sphériques. Nous avons exposé les différences à prendre en considération pour l'expression de la vitesse de thermophorèse entre le domaine moléculaire et le domaine continu. On a pu constater que l'interaction entre les molécules du gaz et la surface de la particule, définie par les facteurs d'accommodation, caractérise l'expression de la vitesse de thermophorèse. On a également observé que la vitesse de thermophorèse dépend fortement du rapport des conductivités thermique du gaz et de la particule, notamment lorsque la taille des particules augmente.

Cette étude bibliographique a surtout mis en évidence que des particules non sphériques telles que les agrégats ne peuvent pas être considérées comme des particules sphériques, au risque de sous estimer la vitesse de thermophorèse et donc le dépôt de ce type de particules par thermophorèse. Nous avons constaté, d'une part que l'orientation par rapport au gradient de température d'une particule non sphérique a une influence sur sa vitesse de thermophorèse et, d'autre part, qu'un agrégat tend à s'orienter parallèlement à ce même gradient de température, ce qui augmente sa vitesse de thermophorèse (Mackowski, 1990). Il existe peu de travaux théoriques reliant le comportement thermophorétique des agrégats à leurs morphologies fractales. Par exemple, Mackowski (2006) montre dans sa simulation Monte-Carlo une augmentation de la vitesse de thermophorèse d'un agrégat lorsque le nombre de particules primaires augmente. Au contraire, Rosner et Khalil (2000) et Messerer et al. (2003) indiquent que le dépôt par thermophorèse d'agrégats reste élevé et constant sur l'ensemble des nombres de Knudsen.

Les faibles écarts observés par les études théoriques sur l'évolution de la vitesse de thermophorèse des agrégats et le manque de résultats expérimentaux permettant de valider ces théories justifie de développer un dispositif expérimental avec une haute résolution pour l'étude du comportement thermophorétique des agrégats de suies de combustion.

Il existe différentes méthodes pour l'étude expérimentale de la thermophorèse. Les méthodes d'étude de la force de thermophorèse par lévitation électrique et l'utilisation de cellules de Millikan modifiées semblent compliquées à mettre en œuvre, notamment pour l'étude des particules non sphériques. La méthode expérimentale de détermination de la vitesse de thermophorèse, comme proposé par Santachiara *et al.* (2002), présente de grandes incertitudes liées à la lecture des résultats. Les méthodes de dépôt (par exemple Sagot *et al.*, 2009) pour déterminer une valeur du coefficient de thermophorèse nécessitent de disposer d'un modèle liant le rendement et le coefficient de thermophorèse, en fonction des paramètres de l'écoulement.

Suite à cette phase, on a proposé de développer un dispositif original permettant d'obtenir directement et avec une forte résolution la vitesse de thermophorèse de particules sphériques ou non sphériques ; le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire (SMTC). Ce dispositif s'appuie sur le concept du *Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire* (SMEC) développé par Pourprix (1989). Dans ce dispositif, un aérosol est injecté avec un écoulement radial entre deux disques d'aluminium (un disque chauffé et un disque refroidi) distant de 4 mm où un gradient de température est établi. En fonction du gradient de température et surtout des débits d'aérosol et d'air filtré injectés, une vitesse de thermophorèse est attribuée aux particules sélectionnées.

Une réflexion a été menée sur la réalisation du dispositif, notamment dans le choix des matériaux et solutions techniques pour chauffer et refroidir le dispositif. Pour assurer une bonne homogénéité de température, le choix s'est porté sur une double résistance électrique pour la plaque chaude et un circuit de refroidissement à eau fermée pour la plaque froide. La sélection des matériaux s'est orientée vers de l'aluminium pour sa faible dilatation thermique et l'Epoxy pour ses qualités d'isolant thermique, permettant ainsi de maintenir une distance entre les plaques constantes et donc un gradient de température constant.

Nous avons présenté le développement théorique de la fonction de transfert du SMTC permettant de relier la vitesse de thermophorèse des particules sélectionnées aux conditions expérimentales. La théorie de la fonction de transfert, normalement utilisée pour des dispositifs électrique, a du être modifiée afin de s'appliquer à un appareil thermique avec les contraintes qu'un profil de température peut avoir sur les paramètres physiques de l'aérosol ou de l'air utilisés et donc, des conséquences sur le phénomène de thermophorèse. Nous avons réalisé une étude thermique numérique afin de dimensionner l'instrument et de s'assurer d'une homogénéité thermique et de vitesse dans la zone de sélection des particules. Cette étude a notamment permis de poser les limites thermiques et de vitesses d'écoulement de l'instrument.

La troisième phase était consacrée à la description du dispositif expérimental utilisé d'une part pour la qualification du SpectroMètre Thermophorétique Circulaire et, d'autre part, pour l'étude du comportement thermophorétique des particules de suie. Nous avons présenté les moyens de productions des particules sphériques et non-sphériques ainsi que les dispositifs permettant de sélectionner les particules en termes de mobilité électrique et d'obtenir un aérosol parfaitement monodispersé. Les agrégats produits par le générateur de suies ont été caractérisé grâce à une analyse d'images des particules par microscopie électronique (MET). Cette analyse nous a permis d'obtenir les paramètres morphologiques des agrégats (dimension fractale, préfacteur fractale, diamètre des particules primaires). Nous avons exposé deux méthodes permettant de connaître le nombre de particules primaires des agrégats et retenu celle basée sur le CPMA proposant la plus faible incertitude sur N_{pp} .

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire a été qualifié, dans un premiers temps, en mode électrique afin de valider les côtes géométrique du dispositif. Un protocole expérimental permet l'établissement de la fonction de transfert thermique du SMTC. Contrairement au dispositif électrique classique, la fonction de transfert expérimentale du SMTC est réalisé à un gradient de température et un débit d'aérosol constant et par la seule variation du débit d'air filtré Q_c . Les deux pentes de la fonction de transfert nous permettent de déterminer le débit volumique d'air filtré Q_c et la différence entre les débits volumiques d'injection et d'extraction de l'aérosol Q_a et Q_s . L'intersection entre les deux pentes de la fonction de transfert nous donnant le débit Q_c tandis que l'intersection entre les pentes et la valeur maximale de la fonction de transfert nous donne la valeur correspondant à $Q_s - Q_a$. La vitesse de thermophorèse correspondante à la fonction de transfert expérimentale est calculée à partir de la différence de débit volumique $Q_s - Q_a$ et du débit d'air filtré Q_c calculé à la température moyenne de la plaque chaude et de la plaque froide. Une comparaison entre les mesures granulométriques en entrée et sortie du SMTC de billes de latex et d'agrégats a montré une stabilité du diamètre de particules injectées dans le SMTC. Le passage des particules (billes de latex ou agrégats) dans le SMTC n'influence donc pas leur taille. Ces mesures granulométrique ont également mis en avant un effet de charges multiples des particules sélectionnées par un DMA en amont du SMTC. En conséquent, nous avons choisi d'utiliser deux DMA en série afin d'obtenir un aérosol parfaitement monodispersé et de réduire cet effet de charges multiples. Un calcul de propagation d'erreurs a permis de calculer l'incertitude relative sur la vitesse de thermophorèse des particules obtenue grâce au SMTC. Cette incertitude, égale 5,5 %, montre la capacité du SMTC à déterminer une vitesse effective de thermophorèse avec une haute résolution.

La dernière phase de cette étude a consisté à la réalisation d'expériences pour la mesure des vitesses de thermophorèse de particules sphériques et d'agrégats. Dans un premier temps nous avons réalisé des essais avec des particules sphériques (billes de latex) dont le comportement thermophorétique est connu et expliqué par de nombreuses théories. Nous avons comparé nos résultats expérimentaux avec les différents modèles de vitesse de thermophorèse disponibles dans la littérature. Bien que largement utilisé pour l'évaluation de dépôts thermophorétique, le modèle de Talbot fournit toujours des valeurs de V_{th} plus élevées que celles déterminées par nos mesures, dans la gamme des diamètres de cette étude (64 à 500 nm). Par ailleurs, on constate que le modèle de Yamamoto et Ishihara (1988) sous-estime la valeur de la vitesse de thermophorèse, et ceci même lorsqu'on considère une version modifiée de ce modèle en prenant en compte une loi de traînée de type Millikan. Par contre, nous obtenons un bon accord entre les vitesses de thermophorèse déterminées à partir de nos résultats expérimentaux et le modèle de Beresnev et Chernyak (1995). Ces résultats confirment les conclusions de Li et Davis (1995), Prodi *et al.* (2007) et Sagot *et al.* (2009), cependant il s'est avéré que pour obtenir un bon accord entre nos mesures et la théorie de Beresnev, nous n'avons pas eu à choisir un coefficient d'accommodation thermique inférieur à 1, coefficient qui permet de prendre en compte l'interaction collisionnelle entre les molécules du gaz

et la particule. Ces résultats nous ont permis de valider les mesures de vitesse de thermophorèse obtenues avec le SMTC pour des particules sphériques (billes de latex).

Dans un second temps, nous avons réalisé des mesures de vitesse de thermophorèse pour des agrégats issus du générateur CAST, pour des diamètres de mobilité électrique allant de 30 nm à 600 nm. En comparant les vitesses de thermophorèse des agrégats à celles obtenues avec les billes de latex, on remarque un écart significatif, pouvant atteindre 65 % entre une bille de latex et un agrégat de 500 nm. De plus, nous obtenons un comportement thermophorétique des agrégats inverse à celui des sphères. Ainsi nous remarquons une augmentation de la vitesse de thermophorèse des agrégats lorsque leur taille augmente. En représentant l'évolution des vitesses de thermophorèse des agrégats en fonction du nombre de particules primaires, nous avons remarqué que la vitesse de thermophorèse suit une loi de puissance et est fortement dépendante du nombre de particules primaires de l'agrégat. Ces résultats sont en bon accord avec la simulation Monte-Carlo de Mackowski (2006) qui a montré que bien qu'indépendante de la dimension fractale de l'agrégat, la vitesse de thermophorèse augmentait avec le nombre de particules primaires. Ce résultat peut être justifié par l'augmentation du nombre de réflexion moléculaire sur l'agrégat lorsque le N_{pp} augmente. Nous observons cependant un écart entre nos résultats et le modèle de Mackowski pouvant atteindre 9 %. Cependant, cette différence peut être justifiée par les hypothèses prises par Mackowski dans le développement de son modèle qui impose une orientation aléatoire de son agrégat par rapport au gradient de température (position de départ) et considère que l'agrégat est figé et ne prend pas une orientation préférentielle au cours de sa migration thermophorétique. La différence entre nos résultats expérimentaux et le modèle de Mackowski tend à montrer que nos agrégats pourraient s'orienter parallèlement au gradient de température lors de leurs migration thermophorétique et atteignent ainsi une vitesse de thermophorèse supérieure à celle prédite par le modèle de Mackowski. On peut également se poser la question du recouvrement des particules primaires et de son impact sur la vitesse de thermophorèse, hypothèse non prise en compte par le modèle de Mackowski qui considère la liaison entre les particules primaires comme étant un point de contact, ce qui n'est le cas pour des agrégats issus de suies de combustion. Cette dépendance de V_{th} avec le nombre de particule primaire a également été observée en comparant nos résultats avec les résultats de Messerer *et al.* (2003) sur des agrégats issus du générateur PALAS GFG 1000. Nous observons un très bon accord entre nos résultats et ceux de Messerer malgré la différence de la taille des particules primaires entre les agrégats produits par le CAST et ceux produits par le GFG 1000. Cette différence pourrait donc signifier que la taille des particules primaires, pour des d_{pp} inférieurs à 20 nm, n'a pas un impact sur la vitesse de thermophorèse des agrégats.

Pour comprendre le comportement thermophorétique des agrégats, nous nous sommes interrogé sur la différence entre la conductivité thermique d'un agrégat, la force de traînée par rapport à une sphère et de l'influence de ces paramètres sur sa vitesse de thermophorèse. En comparant nos résultats expérimentaux au modèle de Talbot en incluant les différentes expressions de la force de traînée disponible dans la littérature, on arrive au constat que la prise en compte de la morphologie des agrégats par ces modèles de force de traînée ne suffit pas à justifier l'écart observé entre les billes de latex et les agrégats. En considérant l'agrégat comme une sphère poreuse, nous avons pu déterminer une porosité de l'agrégat en fonction de sa longueur maximale projeté ou de son rayon de giration. Cette porosité nous a permis, en utilisant les lois disponibles dans la littérature (Tavman, 1996 et Krupitczka, 1967), d'établir une conductivité thermique effective de l'agrégat dépendant de sa longueur maximale projeté ou de son rayon de giration. En intégrant ces conductivités thermiques effective dans les modèles de Beresnev et de Talbot, nous avons remarqué que l'utilisation du modèle de Beresnev associé une faible conductivité thermique effective permet d'obtenir une bonne estimation de la vitesse de thermophorèse d'agrégats de faible dimension fractale. Ce dernier résultat suggère que la conductivité thermique du carbone, dans le cas des agrégats, semble négligeable dans la modélisation du comportement thermophorétique des agrégats.

Les perspectives de ce travail sont nombreuses. Dans un premier temps, il nous paraît important d'approfondir cette notion de conductivité thermique effective d'agrégats très 'aérés' (avec une dimension fractale inférieure à 2). Des mesures expérimentales ou une étude théorique plus approfondie de la conductivité thermique effective de particules complexe comme les agrégats permettraient de mieux justifier l'approche présentée dans le cadre de notre étude.

Par ailleurs, on peut également se poser la question de la signification des facteurs d'accommodation, utilisés dans les lois pour des particules sphériques, sur des particules tels les agrégats.

En second lieu, les agrégats étudiés dans cette étude étant composés principalement de carbone élémentaire, la réalisation d'essais avec des agrégats composés de carbone organique, comme on peut le trouver en situation d'incendie, apporterait des informations complémentaires sur l'impact de la nature des agrégats sur la vitesse de thermophorèse.

Nous avons observé une dépendance de la vitesse de thermophorèse des agrégats avec le nombre de particules primaires pour des agrégats composé de moins de 4 000 particules primaires. Or, on peut trouver, notamment en situation d'incendie, des agrégats plus gros que la gamme étudiée dans cette étude. Il nous paraît important de s'intéresser à l'évolution de cette vitesse de thermophorèse pour des agrégats avec des diamètres de mobilité supérieurs à 600 nm, qui comporteront un nombre de particules primaires bien plus important.

Enfin, l'étude a montré une indépendance de la vitesse de thermophorèse avec la taille des particules primaires pour des D_{pp} inférieurs à 20 nm. Une poursuite de cette étude avec des expériences sur des agrégats composés de particules primaires de tailles supérieures à 20 nm permettrait savoir si cette observation reste valable pour des D_{pp} plus important.

RÉFÉRENCES

- Bakanov, S. P. (1991). Thermophoresis in gas at small Knudsen numbers. *Aerosol Sci. Technol.* **15**: 77.
- Bakanov, S.P. (2005). The thermophoresis of solids in gases. *Journal of applied Mathematics and Mechanics* **69**: 767-772.
- Ben Othmane, M., Havet, M., Gehin, E., et Sollicec, C. (2010). Mechanisms of particle deposition in ventilation ducts for a food factory. *Aerosol Science and Technology* **44**: 775-784.
- Beresnev, S., et Chernyak, V. (1995). Thermophoresis of a spherical particle in a rarefied gas: Numerical analysis based on the model kinetic equations. *Physics of Fluids* **7**: 1743-1756.
- Binder C., Feichtinger C., Schmid H.-J., Thürey N., Peukert W. et Råde U. (2006). Simulation of the hydrodynamic drag of aggregates particles. *J. Colloidal and Interface Sci.* **301** : 155-167.
- Brasil, A. M., Farias, T. L. et Carvalho M. G. (1999). A recipe for image characterization of fractal like aggregates. *J. Aerosol Sci.* **30** : 1379-1389.
- Brock, J.R. (1962). On the theory of thermal forces acting on aerosol particles. *Journal of Colloid Science* **17**: 768-780.
- Brock, J.R. (1967). Experiment and theory for the thermal force in the transition region. *J. Colloid Interface Sic.* **25**: 392-395.
- Cai, J., Lu, N., et Sorensen C.M. (1993). Comparison of size and morphology of soot aggregates as determined by light scattering and electron microscope analysis. *Langmuir*, vol. 9, 2861-2867.
- Chan, P., et Dahneke B. (1981). Free-molecule drag on straight chains of uniform spheres. *J. Appl. Phys.* **52 (5)** : 3106-3110.
- Chernyakov, A. L. (2001). Hydrodynamic Drag of a Fractal Cluster. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **93**, No. 4 : 771-776.
- Dahneke, B. (1982). Viscous Resistance of Straight-Chain Aggregates of Uniform Spheres, *Aerosol Sci. Tech.* **1** :179-185.
- Davies, C.N. (1966). Deposition from moving aerosols. Dans *Aerosol Science, Academic Press, London*.
- Derjaguin, B.V., Storozhilova A.I., et Rabinovich Y.I. (1965) Experimental verification of the theory of thermophoresis of aerosol particles. *J. Colloid Interface Sci.* **21**: 35-58.
- Derjaguin, B.V., et Yalamov, Yu. (1965). Theory of thermophoresis of large aerosol particles. *Journal of Colloid Science* **20**: 555-570.
- Derjaguin, B. V., Rabinovich, Ya. I., Storozhilova, A. I., et Scherbina, G.I. (1976). Measurement of the coefficient of thermal slip of gases and the thermophoresis velocity of large-size aerosol particles. *J. Colloid Interface Sic.* **57**: 451-461.
- Epstein, P.S. (1929). Zur theorie des Radiometers. *Z. Physik* **54**: 537-563.
- Ferge, T., Karg, E., Schroppel, A., Coffee, K. R., Tobias, H. J., Frank, M., Gard, E. E., and Zimmermann, R. (2006). Fast determination of the relative elemental and organic carbon of aerosol samples by on-line single-particle aerosol time-of-flight mass spectrometry. *Environ. Sci. Technol.* **40**: 3327-3335.
- Fissan, H., Hummes, D., Stratmann, F., Büscher, P., et Neumann, S. (1996). Experimental comparison of four differential mobility analyzers for nanometer aerosol measurements. *Aerosol Sci. Technol.* **24** : 1-13.

- Friedlander S. K. (200). Smoke, Dust, and Haze. Fundamentals of Aerosol Dynamics. Second Edition, Oxford University Press, 407 p., ISBN 0-19-512999-7.
- Fuchs, N. A. (1967). The mechanics of aerosol. *Pergamon Press, London*.
- Garcia-Ybarra, P., et Rosner, D.E. (1989). Thermophoretic properties of non-spherical particles and large molecules. *Am. Inst. Chem. Eng. J.* **35**: 139-147.
- Garcia-Ybarra, P., Castillo, J. L., et Rosner, D.E. (2006). Drag on a large spherical aggregate with self-similar structure: an asymptotic analysis. *J. Aerosol Sci.*, **37** : 413-428.
- Healy, D. P., et Young, J. B. (2010). An experimental and theoretical study of particle deposition due to thermophoresis and turbulent in an annular flow. *International Journal of Multiphase Flow* **36**: 870-881.
- Hidy, G. M., Brock, J. R. (1970). The dynamics of aerocollidal systems. Pergamon press, Oxford **Vol 1**.
- Hinds, W. C. (1999). Aerosol technology : properties, behaviour, and measurement of airborne particles (2^{ème} éd.). New York : Wiley Interscience.
- Ivchenko, L. N., et Yalamov, Yu. I. (1971). The hydrodynamical method for the thermophoretic velocity of moderate large non-volatile particles. *Russian Journal of Physical Chemistry*, **45** : 317.
- Jacobsen, S., et Brock, J. R. (1965). The thermal force on spherical sodium chloride aerosols. *J. Colloid Sci.*, **20**: 544-554.
- Jing, L. (2002). Influence of air on the soot particles in Co-flow diffusion flame. *6th ETH Conference on Nanoparticle measurement, Zurich*.
- Jullien, R., et Botet, R. (1987). Aggregation and fractal aggregates. World Scientific. 120p. ISBN 9971-50-248-8.
- Khizhnyak, P. E., Chechethin, A. V., et Glybin, A. P. (1979). Thermal conductivity of carbon black. *Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal*, **37(3)** : 475-478.
- Kim J. H., Mulholland, G. W., Kukuck, S. R., et Pui, D. H. Y. (2005). 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* **110(1)**: 31-54.
- Kim A. S. et Yuan R. (2005). Hydrodynamics of an ideal aggregate with quadratically increasing permeability. *J. Colloid Interface Sci.* **285 (2)** : 627-633.
- Köylü, Ü.Ö., Faeth, G. M., Farias, T. L., et Carvalho M. G. (1995a). Fractal and projected Structure properties of soot aggregates. *Combustion and Flame* **100** : 621-633.
- Köylü, Ü.Ö., Xing, Y., Rosner, D.E. (1995b). Fractal morphology analysis of combustion-generated aggregates using angular light scattering and electron microscope images. *Langmuir*. **11** : 4848-4854.
- Knutson, E.O., et Whitby, K.T. (1975). Aerosol classification by electric mobility: apparatus, theory, and applications. *J. Aerosol Sci.* **6** : 443-451.
- Krupitczka, R. (1967). Analysis of thermal conductivity in granular materials. *Int. Chem. Engng* **7** : 122-144.
- Lall A. A., Seipenbusch M., Rong W. et Friedlander S. K. (2006). On-line measurement of ultrafine aggregate surface area and volume distribution by electrical mobility analysis: II. Comparison of measurements and theory. *J. Aerosol Science*. **37** : 272-282.
- Le Bronec, E., Renoux, A., Boulaud, D., et Pourprix, M. (1999). Effect of gravity in differential mobility analysers. A new method to determine density and mass of aerosol particles. *J. Aerosol Sci.*, **30** : 89-103.
- Leong, K.H. (1984). Thermophoresis and diffusiophoresis of large aerosol particles of different shapes. *J. Aerosol Sci.* **15**: 511-517.

- Li, W., et Davis, E.J. (1995). Measurement of the thermophoretic force by electrodynamic levitation: microspheres in air. *J. Aerosol Sci.* **26**: 1063-1083.
- Liu, B. Y. H., et Agarwal, J. K. (1974). Experimental observation of aerosol deposition in turbulent flow. *J. Aerosol Sic.* **5**: 145-155.
- Mackowski, D.W. (1990). Phoretic behavior of asymmetric particles in thermal nonequilibrium with the gas: two-sphere aggregates. *J. Colloid Interface Sci.* **140**: 139-157.
- Mackowski, D.W. (2004). Monte Carlo simulation of Hydrodynamic drag and thermophorèses of fractal aggregates of spheres in the free-molecule flow regime. *J. Aerosol Sci.* **37**: 242-259.
- Megaridis, C.M., et Dobbins, R.A. (1990). Morphological description of flame generated materials. *Combustion Science and Technology.* **71** : 95-109.
- Mesbah, B., Boulaud, D., Pourprix, M., et Renoux, A. (1993). Circular electrical mobility spectrometer. Proc. of the 1993 European Aeerosol Conference. *J. Aerosol Sci.*, **24**, S219-S220.
- Messerer, A., Niessner, R., et Pöschl, U. (2003). Thermophoretic deposition of soot aerosol particles under experimental conditions relevant for modern diesel engine exhaust gas systems. *Journal of Aerosol Science*, **34** : 1009-1021.
- Montassier, N. (1990). Etude du dépôt des aérosols par thermophorèse dans un écoulement laminaire. Rapport CEA-R-5533.
- Muñoz-Bueno, R., Hontañón, E., et Rucandio, M. I. (2005). Deposition of fine aerosols in laminar tube flow at high temperature with large gas-to-wall temperature gradients. *Journal of Aerosol Science*, **36** : 495-520.
- Nerisson, P. (2009). Modélisation du transfert des aérosols dans un local ventilé. Thèse de l'université de Toulouse, Rapport IRSN-2009/112-FR.
- Nishio, G., Kitani, S., et Takahashi, K. (1974). The thermophoresis deposition of aerosol particles in a heat-exchanger pipe. *Ind. Engng. Chem. Process Dess. Developp.* **13**: 408-415.
- Olfert, J. S., et Collings, N. (2005). New method for particle mass classification : the Couette centrifugal particle mass analyser. *J. Aerosol Sci.* **36** : 1338-1352.
- Oostra, W., Marijnsissen, J.C.M., et Scarlett, B. (1998). The measurement of thermophoresis under gravity conditions and the influence of charge. *J. Aerosol Sci.* **29**: S1109-S1110.
- Ono, H., Dobashi, R., et Sakuraya, T. (2002). Thermophoretic velocity measurements of soot particles under a microgravity condition. *Proceeding of the Combustion Institute* **29**: 2375-2382.
- Ouf, F. X., (2006). Caractérisation des aérosols émis lors d'un incendie. Thèse de l'Université de Rouen, Rapport IRSN-2006/62-FR.
- Park, K., Kittelson, D. B., Zachariah, M. R., et McMurry, P. H. (2004). Measurement of Inherent Material Density of Nanoparticle Agglomerates, *J. Nanoparticle Res.* **6(2)** : 267-272.
- Perea, A., Garcia-Ybarra, P. L., et Castillo, J. L. (2007), Dynamics of porous aerosol particles under thermal gradients, European Aerosol Conference 2007, Salzburg, Abstract T06A021.
- Pourprix, M. (1989), Capteur électrostatique de particules d'aérosol, Brevet Français n° 89 08400.
- Pourprix, M. (1997). Electrical mobility selector of charged particles. US Patent 5,592,096; Jan. 7 1997.
- Prodi, F., Santachiara, G., et Prodi, V. (1979). Measurement of thermophoretic velocities of aerosol particles in the transition region. *J. Aerosol Sci.* **10**: 421-425.
- Prodi, F., Santachiara, G., Di Matteo, L., Vedernikov, A., Beresnev, S. A., et Chernyak, V. G. (2007). Measurements of thermophoretic velocities of aerosol particles in microgravity conditions in different carrier gases. *Journal of Aerosol Science*, **38** : 645-655.
- Reed, L.D. (1971). A Continuum Slip Flow Analysis of Steady and Transient Thermophoresis. M.Sc.

Thesis, University of Illinois, Urbana-Champaign, IL.

- Romay, F. J., Takagaki, S. S., Pui, D. H. Y., et Liu, B. H. Y. (1998). Thermophoretic deposition of aerosol particles in turbulent pipe flow. *J. Aerosol Sci.* **29** : 943-959.
- Rosner, D.E., Mackowski, D.W., et Garcia-Ybarra, P. (1991). Size- and structure-insensitivity of the thermophoretic transport of aggregated 'soot' particles in gases. *Indust. Sci. Technol.* **80**: 87-101.
- Rosner, D. E., et Tandon, P. (1994). Prediction and correlation of 'accessible area' of large multiparticle aggregates. *AIChE Journal*, **40** : 1167-1182.
- Rosner, D. E., et Khalil, Y. F. (2000). Particle morphology and Knudsen transition-effects on thermophoretically dominated total mass deposition rates from "coagulation-aged" aerosol population. *Journal of Aerosol Science*, **31**, 273-292.
- Sagot, B., Antonini, G., et Buron, F. (2009). Annular flow configuration with high deposition efficiency for the experimental determination of thermophoretic diffusion coefficients. *Journal of Aerosol Science* **40**: 1030-1049.
- Sagot, B. (2010). Contribution à l'étude du transfert thermophorétique, appliqué à l'intensification des processus de séparation gaz/particules en écoulement à phase dispersé. Thèse de l'université de Technologie de Compiègne.
- Santachiara, G., Prodi, F., et Cornetti, C. (2002). Experimental measurements on thermophoresis in the transition region. *Journal of Aerosol Science*, **33** : 769-780.
- Schadt, C.F., et Cadle, R.D. (1961). Thermal forces on aerosol particles. *J. Phys. Chem.* **65**: 1689 - 1694.
- Sone, Y. (1972). Flow induced by thermal stress in rarefied gas. *The Physics of Fluids* **15**: 1418-1423.
- Sorensen, C. M., et Feke, G. D. (1999). The morphology of Macroscopic Soot. *Aerosol Sci. and Tech.* **25** (3) : 328-337.
- Sorensen, C. M. (2011). The mobility of fractal aggregates : a review. *Aerosol science and technology.* **45** : 755-769.
- Stratmann, F., Otto, E., et Fissan, H. (1994). Thermophoretical and diffusional particle transport in cooled laminar tube flow. *Journal of Aerosol Science*, **25** : 1305-1319.
- Suzuki, S., Kuwana, K., et Dobashi, R. (2009). Effect of particle morphology on thermophoretic velocity of aggregated soot particles. *Int. J. Heat Mass Transfer* **52**: 4695-4700.
- Talbot, L., Cheng R.K., Schefer R.W., et Willis D.R. (1980). Thermophoresis of particles in a heated boundary layer. *J. Fluid Mech.* **101**: 737-758.
- Tavman, I. H. (1996). Effective thermal conductivity of granular porous materials. *Int. Comm. Heat Mass Transfer.* **23** (2) : 169-176.
- Toda, A., Ohi, Y., Dobashi, R., et Hirano, T. (1996). Accurate measurement of thermophoretic effect in microgravity. *J. Chem. Phys.* **105**: 7087-7093.
- Vanni, M. (2000). Creeping flow over spherical permeable aggregates. *Chemical Engineering Science*, **55** : 685-698.
- Veerapaneni S. et Wiesner M. R. (1996). Hydrodynamics of fractal aggregates with radially varying permeability. *J. Colloid Interface Sci.* **177** : 45-57.
- Waldmann, L., et Schmitt, K.H. (1966). Thermophoresis and diffusiophoresis of aerosols. In: *Aerosol Science*, C.N. Davies, ed., Academic Press, London, pp 137-162.
- Wells, A. C. et Chamberlain, A. C. (1967). Transport of small particles to vertical surfaces. *British Journal of Applied Physics* **18**: 1793-1799.

- Wentzel, M., Gorzawski, H., Naumann, K. H., Saatho, H., et Weinbruch, S. (2003). Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols. *Journal of Aerosol Science*. **34** : 1347-1370.
- Williams, M.M.R. (1986). Thermophoretic forces acting on a spheroid. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **19**: 1631-6142.
- Williams, M.M.R. (1987) The thermophoretic forces acting on a bispherical system. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **20**: 355-359.
- Yamamoto, K., et Ishihara, Y. (1988). Thermophoresis of a spherical particle in a rarefied gas of a transition regime. *Phys. Fluids* **31**: 3618-3624.
- Zheng, F., et Davis, E.J. (2001). Thermophoretic force measurements of aggregates of microspheres. *J. Aerosol Sci.* **32**: 1421-1435.
- Zheng, F. (2002). Thermophoresis of spherical and non-spherical particles: a review of theories and experiments. *Advances in Colloid and Interface Science* **97**: 255-278.

Annexe A

Coefficients numériques pour l'utilisation du modèle de Yamamoto

K	A_S	A_W	A_0	K	H_S	H_W	H_0
0.01	0.1485(+1) ^a	-0.3772(-2)	0.9056(-4)	0.01	0.2028(-3) ^a	0.4319(-1)	-0.6501(-1)
0.05	0.1426(+1)	-0.1867(-1)	0.1859(-2)	0.05	0.4984(-2)	0.1918	-0.2933
0.1	0.1358(+1)	-0.3520(-1)	0.4379(-2)	0.1	0.1872(-1)	0.3316	-0.5195
0.2	0.1235(+1)	-0.5612(-1)	0.1741(-2)	0.2	0.5959(-1)	0.5117	-0.8472
0.3	0.1128(+1)	-0.6469(-1)	-0.8786(-2)	0.3	0.1030	0.6185	-0.1085(+1)
0.5	0.9517	-0.6612(-1)	-0.3526(-1)	0.5	0.1755	0.7364	-0.1448(+1)
0.75	0.7894	-0.5981(-1)	-0.6381(-1)	0.75	0.2383	0.8104	-0.1814(+1)
1.0	0.6711	-0.5276(-1)	-0.8512(-1)	1.0	0.2804	0.8521	-0.2142(+1)
2.0	0.4138	-0.3381(-1)	-0.1298	2.0	0.3597	0.9215	-0.3342(+1)
3.0	0.2968	-0.2441(-1)	-0.1485	3.0	0.3896	0.9469	-0.4488(+1)
5.0	0.1881	-0.1560(-1)	-0.1642	5.0	0.4138	0.9640	-0.6719(+1)
7.5	0.1307	-0.1065(-2)	-0.1716	7.5	0.4245	0.9760	-0.9511(+1)
10	0.9884(-1)	-0.8094(-2)	-0.1759	10	0.4303	0.9817	-0.1229(+2)
20	0.5118(-1)	-0.4113(-2)	-0.1812	20	0.4370	0.9902	-0.2338(+2)
30	0.3409(-1)	-0.2756(-2)	-0.1833	30	0.4397	0.9935	-0.3447(+2)
50	0.2103(-1)	-0.1659(-2)	-0.1828	50	0.4412	0.9961	-0.5663(+2)

^a (+1) means $\times 10^{+1}$.

^a (-3) means $\times 10^{-3}$.

Figure A1 : Tables des valeurs des variables A_S , A_W , A_0 , H_S , H_W , H_0 en fonction du nombre de Knudsen Kn (K) dans les tables.

Annexe B

Coefficients numériques pour l'utilisation du modèle de Beresnev

R	f_{11}	f_{12}	f_{21}	f_{22}	f_{31}	f_{32}	f_{41}	f_{42}
1000	-1.324(-5)	1.317(-5)	1.366(-9)	4.924(-8)	1	-0.9947	-1.004	0.9991
800	-2.067(-5)	2.055(-5)	2.677(-9)	9.601(-8)	1	-0.9934	-1.006	0.9989
600	-3.673(-5)	3.645(-5)	6.379(-9)	2.270(-7)	1	-0.9912	-1.007	0.9985
400	-8.256(-5)	8.159(-5)	2.175(-8)	7.619(-7)	1	-0.9868	-1.011	0.9978
200	-3.291(-4)	3.215(-4)	1.791(-7)	5.997(-6)	1	-0.9739	-1.022	0.9955
100	-1.307(-3)	1.248(-3)	1.502(-6)	4.643(-5)	1	-0.9489	-1.044	0.9909
80	-2.036(-3)	1.921(-3)	2.987(-6)	8.917(-5)	1	-0.9367	-1.055	0.9885
60	-3.598(-3)	3.331(-3)	7.225(-6)	2.055(-4)	1	-0.9169	-1.074	0.9846
40	-8.004(-3)	7.139(-3)	2.439(-5)	6.551(-4)	1	-0.8794	-1.110	0.9765
20	-3.115(-2)	2.505(-2)	1.066(-4)	4.417(-3)	1	-0.7812	-1.218	0.9512
10	-0.1109	7.525(-2)	-1.852(-3)	2.639(-2)	1	-0.6360	-1.415	0.8994
8	-0.1636	0.1039	-6.174(-3)	4.513(-2)	1	-0.5819	-1.504	0.8737
6	-0.2626	0.1524	-2.244(-2)	8.749(-2)	1	-0.5101	-1.635	0.8319
4	-0.4780	0.2443	-0.1013	0.2089	1	-0.4098	-1.847	0.7535
2	-1.058	0.4507	-0.7320	0.7674	1	-0.2570	-2.226	0.5676
1	-1.749	0.6623	-3.077	2.247	1	-0.1421	-2.533	0.3574
0.8	-1.952	0.7205	-4.501	3.051	1	-0.1142	-2.609	0.2962
0.6	-2.181	0.7851	-7.034	4.424	1	-8.453(-2)	-2.691	0.2265
0.4	-2.439	0.8559	-1.237(+1)	7.214	1	-5.344(-2)	-2.781	0.1482
0.2	-2.717	0.9310	-2.889(+1)	1.562(+1)	1	-2.237(-2)	-2.881	6.437(-2)
0.1	-2.857	0.9678	-6.220(+1)	3.238(+1)	1	-8.413(-3)	-2.937	2.470(-2)
0.08	-2.884	0.9748	-7.885(+1)	4.073(+1)	1	-5.993(-3)	-2.945	1.767(-2)
0.06	-2.910	0.9816	-1.066(+2)	5.463(+1)	1	-3.793(-3)	-2.961	1.123(-2)
0.04	-2.935	0.9881	-1.620(+2)	8.239(+1)	1	-1.900(-3)	-2.973	5.648(-3)

Figure B1 : Tables de valeurs de f_{k1} , f_{k2} , f_{k3} en fonction du paramètre R.

R	φ_{11}	φ_{12}	φ_{21}	φ_{22}	φ_{31}	φ_{32}	φ_{41}	φ_{42}
1000	1.430(-3)	-1.425(-3)	-1.421(-3)	1.416(-3)	1	-0.9947	-0.9934	0.9881
800	1.787(-3)	-1.780(-3)	-1.773(-3)	1.765(-3)	1	-0.9934	-0.9917	0.9852
600	2.382(-3)	-2.368(-3)	-2.356(-3)	2.342(-3)	1	-0.9912	-0.9890	0.9803
400	3.574(-3)	-3.539(-3)	-3.512(-3)	3.481(-3)	1	-0.9868	-0.9836	0.9706
200	7.123(-3)	-6.999(-3)	-6.891(-3)	6.771(-3)	1	-0.9739	-0.9675	0.9423
100	1.417(-2)	-1.369(-2)	-1.327(-2)	1.282(-2)	1	-0.9489	-0.9364	0.8885
80	1.767(-2)	-1.692(-2)	-1.628(-2)	1.559(-2)	1	-0.9367	-0.9213	0.8630
60	2.347(-2)	-2.216(-2)	-2.105(-2)	1.987(-2)	1	-0.9169	-0.8970	0.8225
40	3.490(-2)	-3.206(-2)	-2.970(-2)	2.728(-2)	1	-0.8794	-0.8509	0.7483
20	6.808(-2)	-5.793(-2)	-4.981(-2)	4.239(-2)	1	-0.7811	-0.7317	0.5716
10	0.1296	-9.714(-2)	-7.248(-2)	5.444(-2)	1	-0.6355	-0.5599	0.3563
8	0.1582	-0.1125	-7.850(-2)	5.612(-2)	1	-0.5811	-0.4977	0.2900
6	0.2028	-0.1341	-8.408(-2)	5.621(-2)	1	-0.5088	-0.4174	0.2135
4	0.2817	-0.1672	-8.625(-2)	5.268(-2)	1	-0.4079	-0.3120	0.1289
2	0.4562	-0.2272	-7.268(-2)	4.044(-2)	1	-0.2550	-0.1740	4.572(-2)
1	0.6480	-0.2822	-4.422(-2)	2.676(-2)	1	-0.1411	-9.216(-2)	1.357(-2)
0.8	0.7045	-0.2970	-3.425(-2)	2.286(-2)	1	-0.1135	-7.491(-2)	8.880(-3)
0.6	0.7698	-0.3133	-2.197(-2)	1.840(-2)	1	-8.415(-2)	-5.735(-2)	5.034(-3)
0.4	0.8447	-0.3309	-6.783(-3)	1.324(-2)	1	-5.329(-2)	-3.937(-2)	2.178(-2)
0.2	0.9281	-0.3488	1.204(-2)	7.231(-3)	1	-2.234(-2)	-2.065(-2)	4.738(-4)
0.1	0.9698	-0.3565	2.305(-2)	3.825(-3)	1	-8.410(-3)	-1.076(-2)	9.206(-5)
0.08	0.9776	-0.3577	2.540(-2)	3.104(-3)	1	-5.992(-3)	-8.708(-3)	5.294(-5)
0.06	0.9849	-0.3587	2.779(-2)	2.366(-3)	1	-3.793(-3)	-6.618(-3)	2.540(-5)
0.04	0.9915	-0.3594	3.022(-2)	1.608(-3)	1	-1.900(-3)	-4.483(-3)	8.596(-6)

Figure B2 : Tables de valeurs de φ_{k1} , et φ_{k2} en fonction du paramètre R.

Annexe C

Le générateur de billes de latex

Dans ce type de générateur, des particules solides (latex) sont diluées dans de l'eau distillée et pulvérisée à l'aide d'une alimentation en air comprimé. Ainsi, un jet d'air perpendiculaire au capillaire d'entrée du liquide à atomiser, aspire par effet Venturi notre solution et la brise en fines gouttelettes. Celles-ci, sont propulsées par le jet vers la paroi opposée. Les plus grosses s'y impactent formant un film fluide qui ruisselle vers la sortie d'excès de liquide. Les plus fines gouttelettes, évacuées par la zone supérieure de l'atomiseur avec le flux d'air du au jet, forment un aérosol.

Afin d'absorber l'humidité, on envoie les gouttelettes dans un dessiccateur au gel de silice.

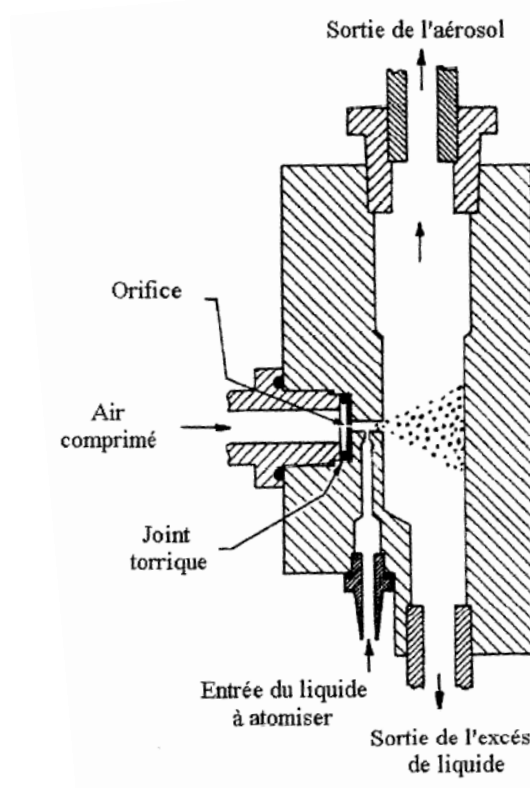


Figure C.1 : Schéma de principe du générateur d'aérosols modèle 3076 de TSI

Annexe D

Le dilueur VKL 10

Un débit d'air propre V_a (défini par une pression d'air comprimé) passe à travers une buse annulaire qui entoure la buse d'entrée de l'aérosol. Une dépression est alors créée par effet Venturi et entraîne l'aspiration d'un débit d'aérosol V_{an} . Les aérosols prélevés sont alors mélangés avec l'air propre dans la chambre de mélange. Si le débit d'air propre est augmenté (augmentation de la pression d'alimentation), le débit d'aérosol dans la buse annulaire est augmenté, ce qui permet de conserver constant le facteur de dilution qui est défini par :

$$W = \frac{(V_a + V_{an})}{V_{an}}. \quad (D.1)$$

La figure D.1 donne une vision schématique du dilueur

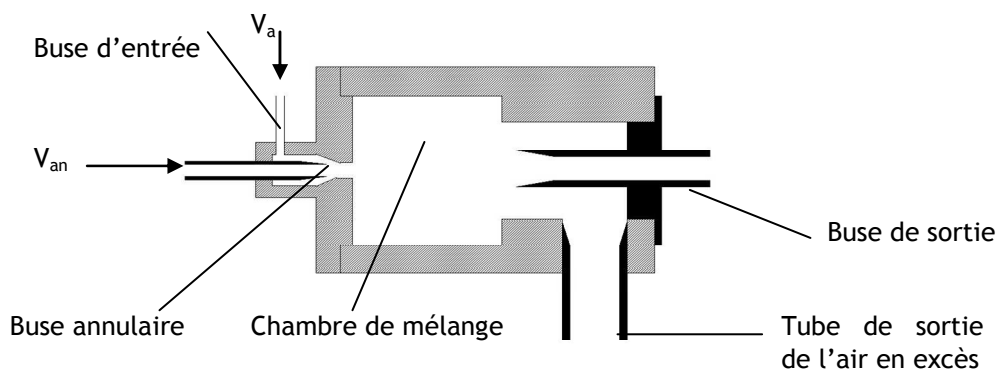


Figure D.1 : Schéma du dilueur VLK

La figure D.2 présente la façade du dilueur :



Figure D.2 : Façade du dilueur VLK

Annexe E

Le scanning Mobility Particle Sizer (SMPS)

Un schéma d'ensemble de la chaîne de mesure SMPS est présenté sur la figure E.1.

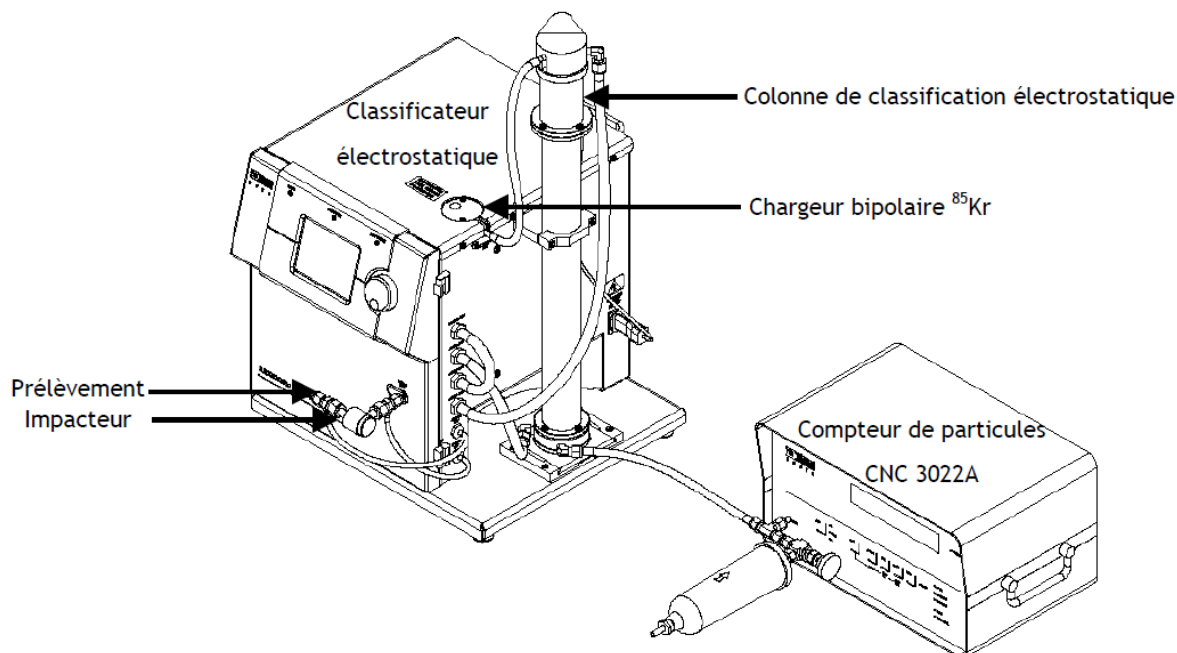


Figure E.1 : Schéma descriptif du granulomètre SMPS

Dans un premier temps, l'objectif du SMPS est d'imposer un état de charge aux particules étudiées afin de maîtriser leur mobilité électrique. Pour ce faire, les particules sont injectées au sein d'un milieu bipolaire, créé par une source scellée de Krypton 85. Cette source permet alors de créer des ions positifs et négatifs (environ 34 eV sont nécessaires pour produire une paire d'ions dans l'air). Des collisions ont alors lieu entre ces ions et les particules aboutissant à la fixation de ces ions à la surface des particules et à l'établissement d'un état de charge au sein de l'aérosol correspondant à l'équilibre de Boltzmann.

La charge acquise par une particule lui confère une mobilité électrique qui est mesurée par l'application d'un champ électrique. La sélection est assurée par le DMA qui est composé de deux cylindres concentriques, une haute tension est appliquée entre le cylindre intérieur (maintenu à un voltage négatif) et le cylindre extérieur (relié à la masse). Un champ électrique est alors créé entre les deux cylindres : une particule chargée positivement est donc attirée par le champ électrique vers l'électrode centrale.

Les électrodes du DMA sont représentées sur la figure E.2. La colonne DMA utilisée dans le cadre de notre étude, a une longueur de 0,44 m. Le diamètre de l'électrode centrale est 0,02 m et celui de l'électrode externe de 0,04 m.

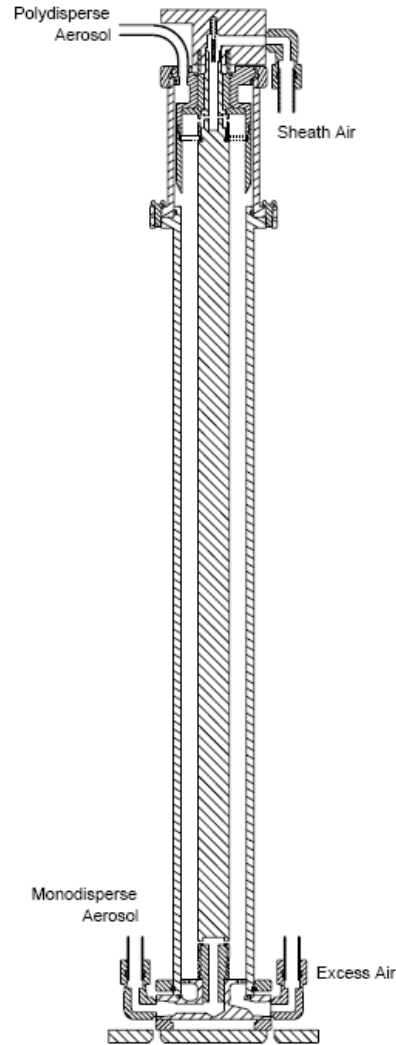


Figure E.2 : Schéma de la colonne du DMA 3080 TSI

Pour rappel, dans un champ électrique, la particule de charge q subit une force F telle que $\vec{F} = q \cdot \vec{E}$ et finit par atteindre une vitesse de migration $v = ZE$. La mobilité électrique Z s'exprime par :

$$Z = \frac{Cu(D_m)ne}{3\pi\eta_g D_m} \quad (\text{E.1})$$

avec :

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

n : nombre de charges élémentaires portées par la particule,

η_g : viscosité dynamique du gaz (Pa.s),

Cu : coefficient de Cunningham.

La mobilité électrique sélectionnée dans le DMA s'exprime par :

$$Z = \frac{Q_{sh}}{2\pi VL} \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right) \quad (\text{E.2})$$

avec :

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

V : potentiel électrique moyen sur le cylindre interne (V),

Q_{sh} : débit d'air d'entrée dans le classificateur ($m^3 \cdot s^{-1}$),

L : longueur du classificateur (m),

r_1 : rayon intérieur de l'espace annulaire (m),

r_2 : rayon extérieur de l'espace annulaire (m).

En combinant ces deux dernières équations on obtient le diamètre équivalent en mobilité électrique D_m :

$$\frac{D_m}{Cu(D_m)} = \frac{2neVL}{3\eta_g Q_{sh} \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)}, \quad (E.3)$$

On dispose alors d'une relation directe entre le champ électrique imposé et le diamètre de mobilité électrique de la particule. Ainsi selon la tension appliquée, les particules qui ont une mobilité électrique élevée seront attirées vers la partie haute du cylindre central et celles avec une mobilité électrique plus faible seront collectées sur la partie basse du cylindre central. Un orifice est présent en bas de l'électrode centrale afin de récupérer (selon la tension appliquée) les particules d'un certain diamètre de mobilité électrique.

Le comptage des particules sortant du classificateur pour les mesures de granulométrie ou sortant du SMTc pour l'établissement de la fonction de transfert est assuré par un compteur à noyaux de condensation.

Le principe d'un compteur à noyaux de condensation est basé sur la condensation de vapeur sur les particules de l'aérosol échantillonné. Les particules de petit diamètre ($d_p < 100 \text{ nm}$) ne sont pas détectables par des méthodes optiques classiques. Pour ce faire, on fait croître la taille des particules pour atteindre des dimensions micrométriques. Ensuite une détection optique est mise en œuvre à l'aide d'un faisceau laser. La figure E.3 présente le principe de fonctionnement du CPC. Les particules pénètrent d'abord dans la chambre de saturation, où des molécules de butanol sont présentes sous forme gazeuse. Les molécules de butanol vont ensuite diffuser et s'adsorber à la surface des particules. L'aérosol entre ensuite dans un tube de condensation où les particules servent de sites de condensation aux vapeurs de butanol, ce qui engendre la formation de microgouttelettes. Ces microgouttelettes sont ensuite dirigées vers un détecteur optique afin d'être comptées.

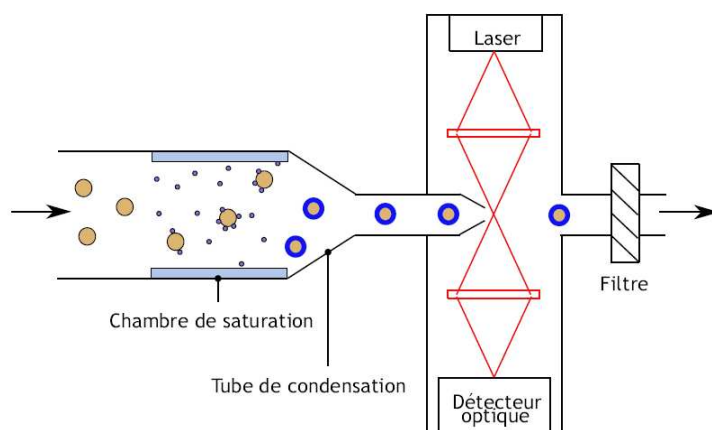


Figure E.3 : Principe d'un compteur de particules de condensation (CPC)

Un point particulier du CPC, est le mode de comptage dans lequel va se faire la mesure. En effet, selon leur concentration, le CPC détermine différemment la quantité de particules (figure E.4). En-dessous de 10^4 particules/cm³, la détection s'opère en mode « dénombrement », c'est-à-dire que chaque particule est comptée individuellement. Une correction est toutefois apportée au-dessus de 10^3 particules/cm³ pour tenir compte de la coïncidence de plusieurs

particules devant le photodétecteur. Au-delà de 10^4 particules/cm³, l'instrument détermine la concentration en particules à partir d'une courbe d'étalonnage : c'est le mode photométrique.

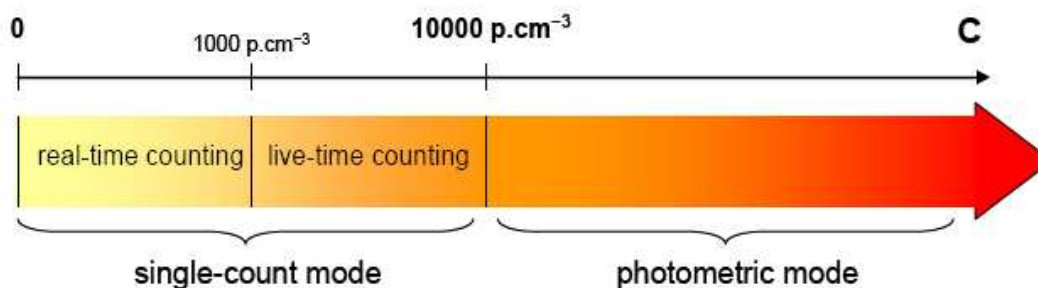


Figure E.4 : Modes de comptage du CPC 3022.

La limite basse de détection du CPC se situe aux alentours de 7 nm pour le modèle TSI 3022. Dans les expérimentations menées, la gamme d'étude considérée couvre des tailles comprises entre 15 nm et 662 nm. Pour des particules supérieures à 50 nm, l'efficacité de comptage du CPC est égale à 100 %. Au-dessous de 50 nm, l'efficacité décroît et vaut, par exemple 85 % pour des particules de 15 nm.

Un impacteur à l'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 E.5 une vue en coupe de cet impacteur afin d'appréhender le phénomène mis en jeu.

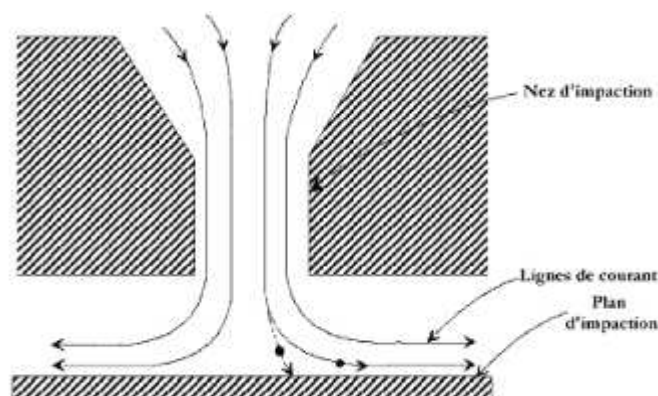


Figure E.5 : Schéma descriptif d'un orifice et d'un plateau d'impaction.

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 :

$$D_{50} = \sqrt{\frac{9\pi Stk \eta_g W^3}{4\rho_p CuQ}}, \quad (E.4)$$

avec :

D_{50} : diamètre de coupure (m),

$$\text{Stk} : \text{Nombre de Stokes, } \text{Stk} = \frac{\rho_p d_p^2 V C_u}{9 \eta_g W},$$

V : vitesse moyenne dans le nez d'impaction (m/s)

η_g : viscosité dynamique du gaz (Pa.s),

W : diamètre du nez d'impaction,

ρ_p : masse volumique de la particule (kg/m^3),

Cu : coefficient de Cunningham,

Q : débit volumétrique (m^3/s).

Annexe F

Comportement du SMTC soumis à une montée de température

Afin de vérifier le comportement du SMTC lorsqu'il est soumis à une montée de température, nous avons effectué des tests avec le même protocole utilisé que pour les tests de fuites lors de la calibration électrique, à savoir des essais sans injection de particules et avec un filtre en entrée de l'aérosol Qa. Ces essais ont été réalisés dans les conditions maximales de températures du SMTC, ce qui correspond à une température de 230°C pour la plaque chaude. Ces essais ont révélés un relargage de particules assez important de l'ordre de 10^6 particules/cm³. Comme on l'a décrit dans le chapitre 2, le SMTC est principalement conçu d'aluminium et de résine époxy permettant l'isolation thermique entre la plaque chaude et la plaque froide.

Nous avons donc testé, de façon indépendante, le comportement de l'époxy lorsque ce matériau est soumis à une température élevée. Pour cela, nous avons placé des chutes de la pièce usinée d'époxy dans un four tubulaire dont la température peut atteindre les 230°C expérimental. Le principe de cette manipulation est très simple, une fois le morceau d'époxy placé au centre du four tubulaire, on effectue un balayage d'air dans celui-ci et on relève la concentration en particules en sortie du four par le biais d'un CPC tout en faisant monter la température du four de 20°C à 230°C. Le résultat de cette manipulation est présenté sur la figure F.1. On constate une augmentation de la concentration en particules à partir de 150°C, ensuite cette concentration chute rapidement pour ne plus évoluer. Lors d'un deuxième essai avec le même échantillon, on n'observe plus de variation de la concentration, on peut donc conclure que la résine époxy n'émet plus de particule une fois qu'elle a subit un prétraitement thermique.

En conséquent, l'ensemble des pièces en époxy du SMTC ont subit un prétraitement thermique en étuve à 230°C pendant une journée afin de s'assurer que celles-ci ne relâchent plus de particules dans le SMTC. Nous avons procédé à une vérification des côtes géométriques de ces pièces usinées avant et après ce prétraitement thermique, qui n'a montré aucune modification par le chauffage.

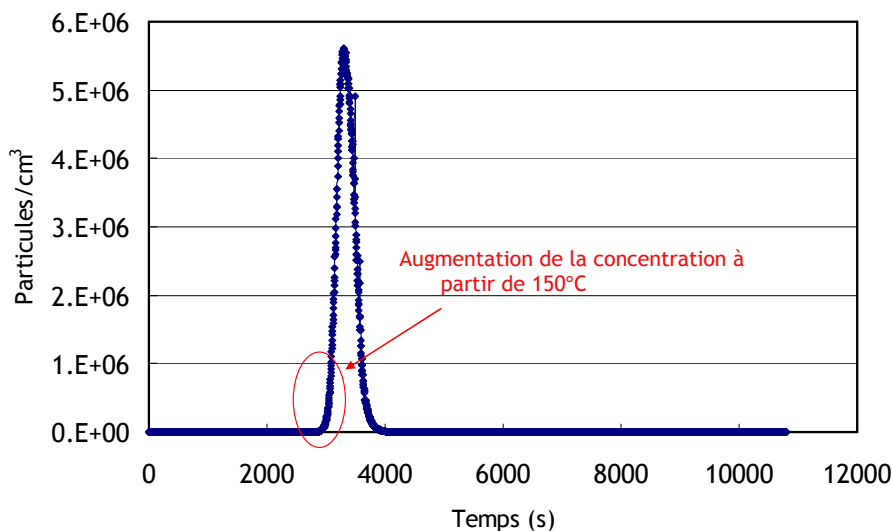


Figure F.1 : Evolution de la concentration de particules émises lors de la montée en température d'un échantillon d'époxy, de 20°C à 230°C.

Après le prétraitement thermique des pièces d'époxy, nous avons de nouveau procédé aux essais de test de fuites dans le SMTC sans observer la moindre présence de particule dans celui-ci.

Annexe G

Le phénomène de charges multiples dans le SMPS

En sortie du DMA, où une mobilité électrique Z est sélectionnée, les particules ayant la mobilité requise sont dirigées vers les instruments (Compteur CPC ou SMTC). Dans l'expression du diamètre de mobilité électrique donnée par la relation 3.4, on voit intervenir le nombre de charges 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 3.25 donne le lien entre le diamètre de mobilité électrique et la tension dans la colonne, mais dépend également du nombre N de charges portées par la particule.

Le nombre de charge 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 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 charges selon le nombre de charges considérées. La première relation est relative à des particules portant au plus $N=2$ charges et elle est valable pour des particules sphériques comprises entre 1 et 1 000 nm :

$$1 \text{ nm} < D_p < 1 \text{ 000 nm pour } N = -1, 0, 1$$

$$20 \text{ nm} < D_p < 1 \text{ 000 nm pour } N = -2, 2$$

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

$$\Phi_N(D_p) = 10^{\left[\sum_{i=0}^5 a_i(N) (\log D_p)^i \right]}, \quad (\text{G.1})$$

Les coefficients $a_i(N)$ sont présentés dans le tableau G.1.

Tableau G.1 : constantes utilisées dans la relation F1

$a(N)$	$N=-2$	$N=-1$	$N=0$	$N=1$	$N=2$
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, on a :

$$\Phi_N(D_p) = \frac{e}{\sqrt{4\pi^2 \epsilon_0 D_p kT}} \cdot \exp \left[- \frac{\left[N - \frac{2\pi\epsilon_0 D_p kT}{e^2} \cdot \ln \left(\frac{Z_{i+}}{Z_{i-}} \right) \right]^2}{2 \frac{2\pi\epsilon_0 D_p kT}{e^2}} \right], \quad (\text{G.2})$$

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

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

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

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

Nous représentons sur la figure G.2 les fonctions de charges (pour N = 1, 2, 3, 4) d'une particule sphérique de diamètre D_p . la figure G.3 représente l'évolution de la mobilité électrique en fonction du rapport facteur de correction de Cunningham sur diamètre des particules correspondant et portant 1, 2, 3 ou 4 charges.

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 d'une analyse ou du traitement 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 tenir compte de l'effet des charges multiples. Dans le cadre de notre étude sur les agrégats, la distribution des diamètres des agrégats produits par le générateur CAST JING s'étale de 20 à 600 nm. On doit donc prendre en compte l'effet des charges multiples, principalement pour les particules de diamètres inférieurs à 100 nm) sur la sélection des particules avant l'injection de l'aérosol monodispersé dans le SMTC.

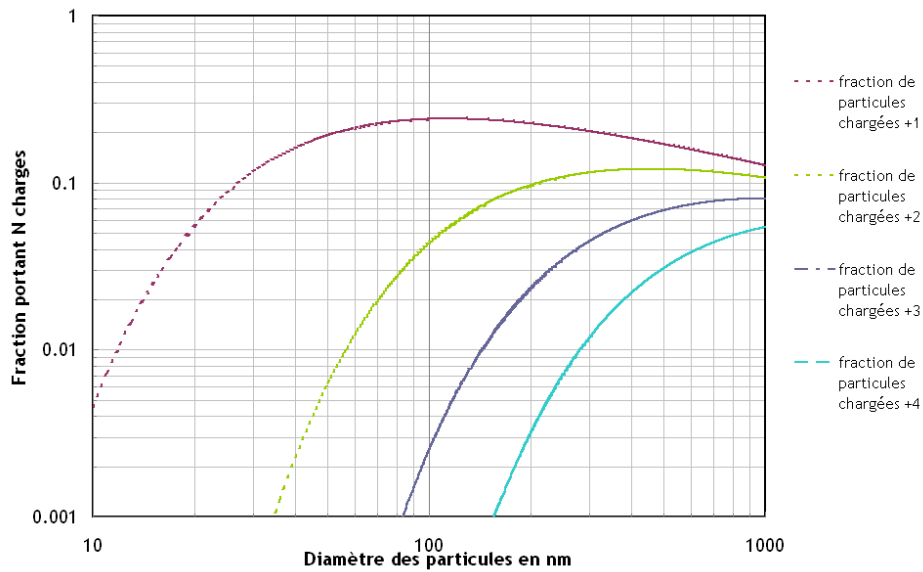


Figure G.2 : Fraction de particules portant N charges en fonction de leur diamètre de mobilité électrique.

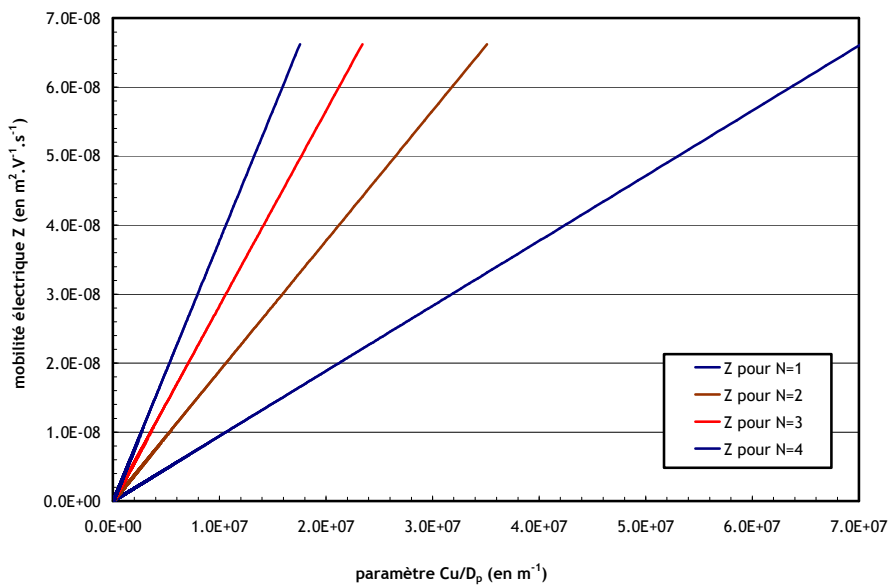


Figure G.3 : Evolution de la mobilité électrique pour N charges en fonction du rapport facteur de correction de Cunningham sur le diamètre des particules correspondant.

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale

De plus, du fait de la nature fractale des agrégats, Lall et Friedlander (2006) ont cherché à caractériser l'efficacité de charges d'un agglomérat constitué de N_{pp} particules primaires. En se basant sur l'étude de la charge des particules fibreuses réalisée par Wen *et al.* (1984), ils ont montré qu'un agglomérat a une efficacité de charge supérieure à une particule sphérique de même diamètre de mobilité électrique. Lall et Friedlander (2006) ont ainsi pu montrer que la distribution en nombre mesurée sur la base de particules sphériques doit être corrigée du fait de la prise en compte de l'agglomération. Cette correction correspond au rapport des efficacités de charge pour obtenir la distribution en nombre des agglomérats $N_{agg}(D_m)$:

$$N_{agg}(D_m) = N_{sph}(D_m) \frac{\eta_{sph}}{\eta_{agg}}, \quad (G.3)$$

où η_{agg} et η_{sph} sont respectivement les efficacités de charge pour un agglomérat et une sphère de charge unique et $N_{sph}(D_m)$ la distribution en nombre des particules sphériques de même diamètre de mobilité électrique. La figure G.4 présente l'évolution du rapport des efficacités de charge en fonction du diamètre de mobilité électrique D_m pour trois tailles de particules primaires.

On peut noter à la vue de la figure G.4 une forte variation du rapport des efficacités de charges avec la taille des particules (sphériques ou agglomérats), ainsi qu'avec la taille des particules primaires. De plus on remarque que pour des agglomérats de diamètre de mobilité supérieur à environ 200 nm, le rapport des efficacités de charge chute et devient inférieur à 1 principalement pour les agglomérats avec les tailles de particules primaires les plus faibles, ce qui a pour conséquence, de sous estimer la concentration en nombre. Ainsi, la concentration en nombre obtenue grâce à l'efficacité de charge sera supérieure à celle obtenue pour des sphères.

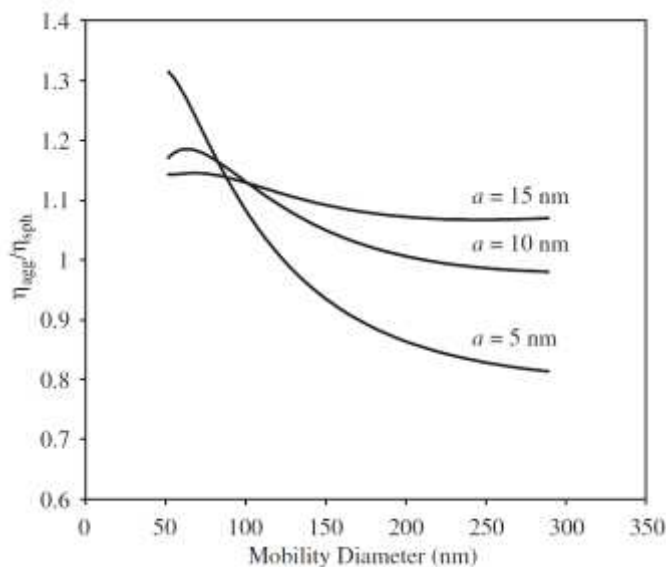


Figure G.4 : Evolution du rapport des efficacités de charge en fonction du diamètre de mobilité électrique D_m et pour des rayons de particules primaires de 5, 10 et 15 nm, d'après Lall et Friedlander (2006).

Annexe H

Mesures granulométriques effectuées en sortie du SMTC

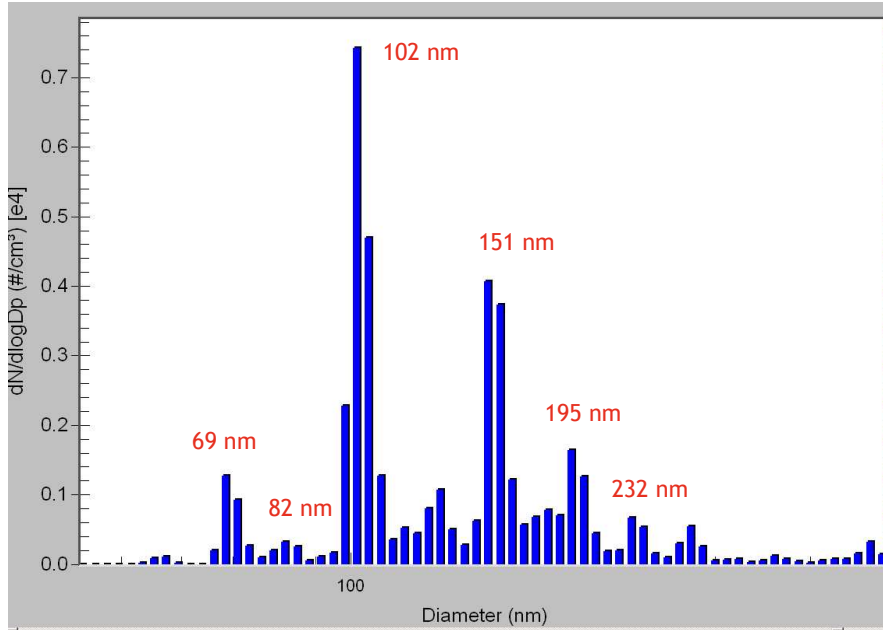


Figure H.1 : Mesure granulométrique en sortie du SMTC pour une sélection d'agrégats de diamètre de mobilité de 100 nm et un gradient de température fixé à 50 750 K/m.

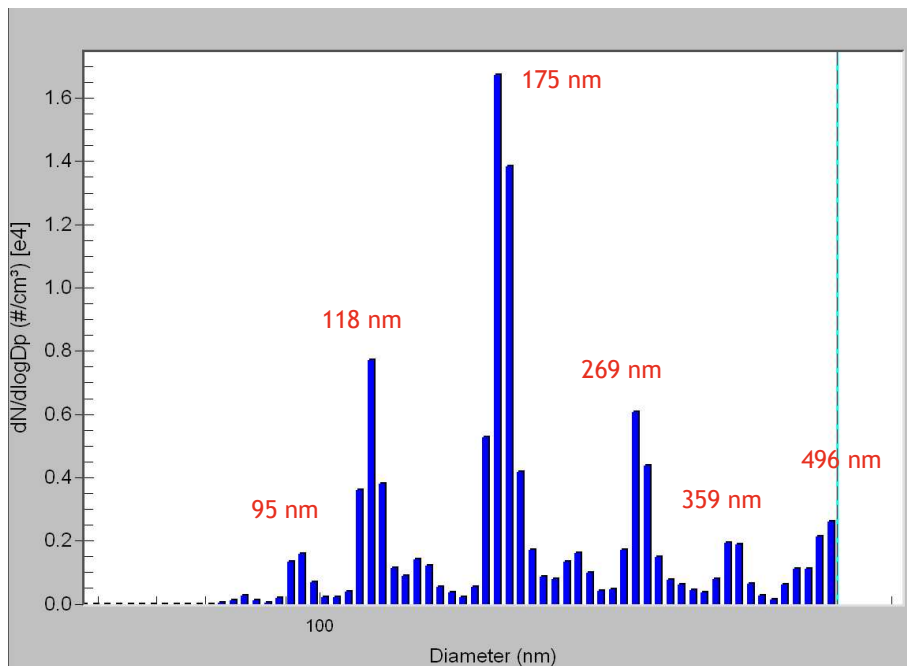


Figure H.2 : Mesure granulométrique en sortie du SMTC pour une sélection d'agrégats de diamètre de mobilité de 100 nm et un gradient de température fixé à 50 750 K/m.

Annexe I

Evolution de la température, de la masse volumique, de la viscosité dynamique et du coefficient de thermophorèse K_{th} entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un gradient de température égal à 50 750 K/m.

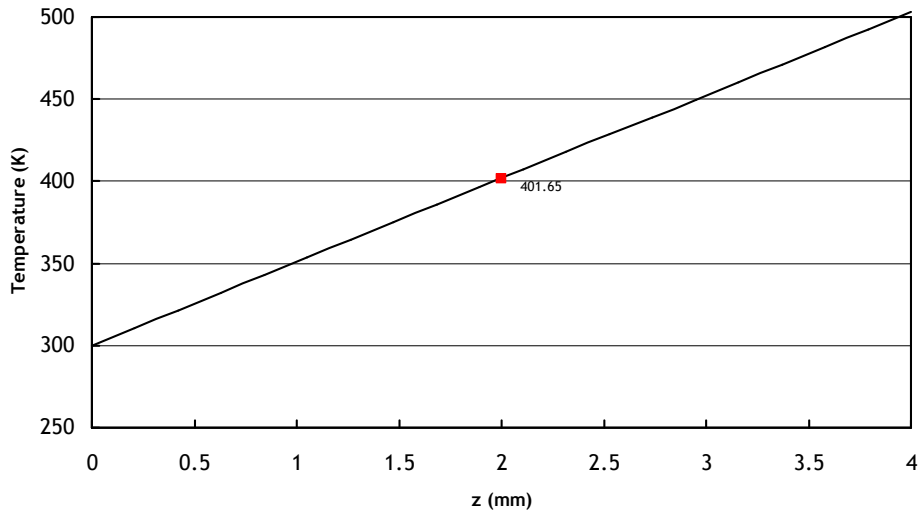


Figure I.1 : Evolution de la température entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un gradient de température égal à 50 750 K/m, moyenne représentée en rouge.

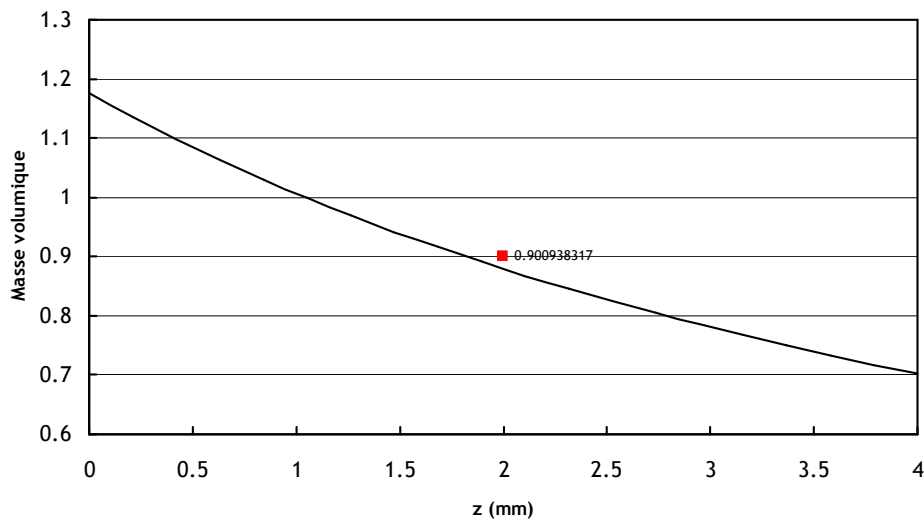


Figure I.2 : Evolution de la masse volumique entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un gradient de température égal à 50 750 K/m, moyenne représentée en rouge.

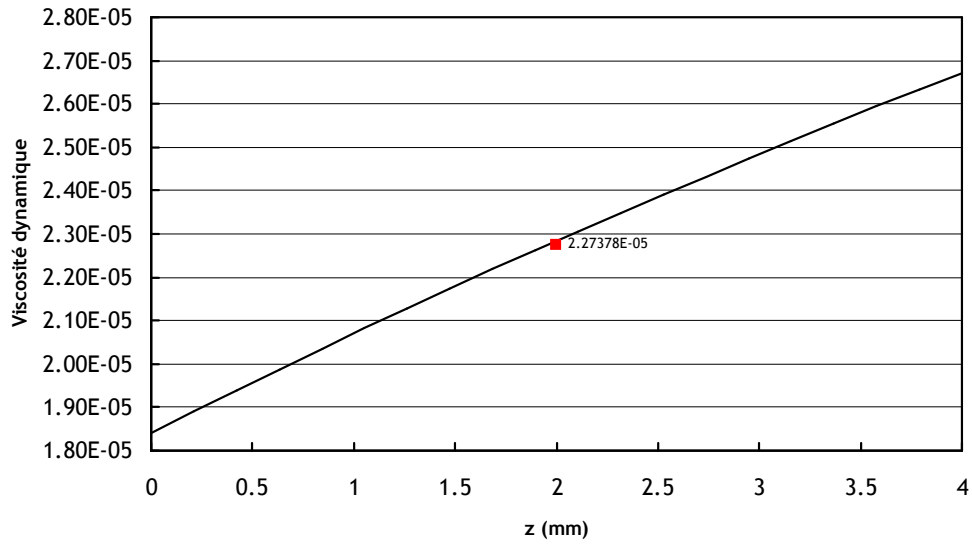


Figure I.3 : Evolution de la viscosité dynamique entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un gradient de température égal à 50 750 K/m, moyenne représentée en rouge.

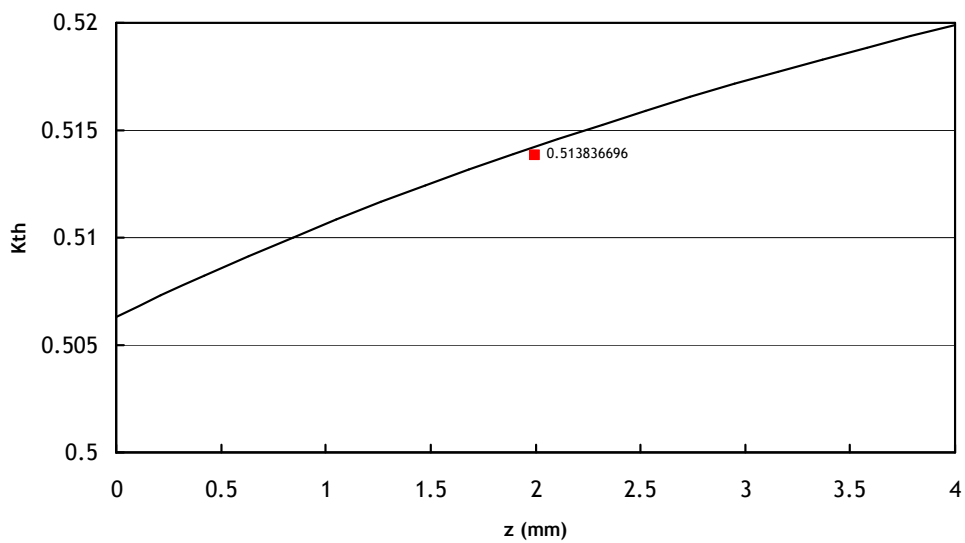


Figure I.4 : Evolution du coefficient de thermophorèse K_{th} entre la plaque chaude et la plaque froide du SMTC pour un gradient de température égal à 50 750 K/m, moyenne représentée en rouge.

Annexe J

Clichés MET des agrégats produits par le CAST après sélection par le DMA

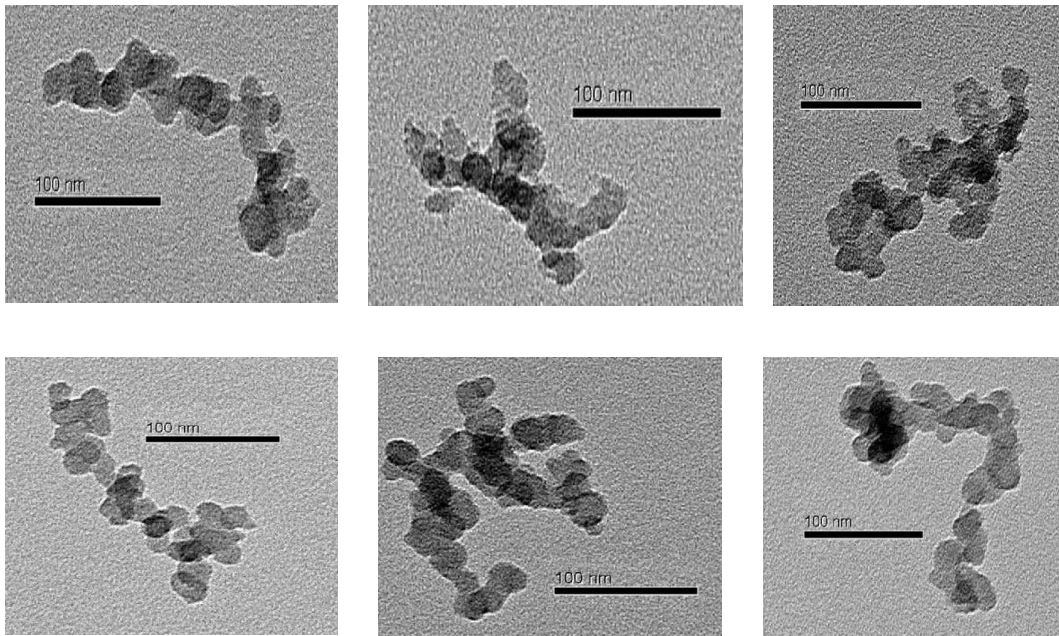


Figure J.1 : Clichés par Microscopie électronique par transmission (MET) des agrégats produits par le générateur CAST après sélection avec un DMA, pour un diamètre de mobilité électrique égal à 64 nm.

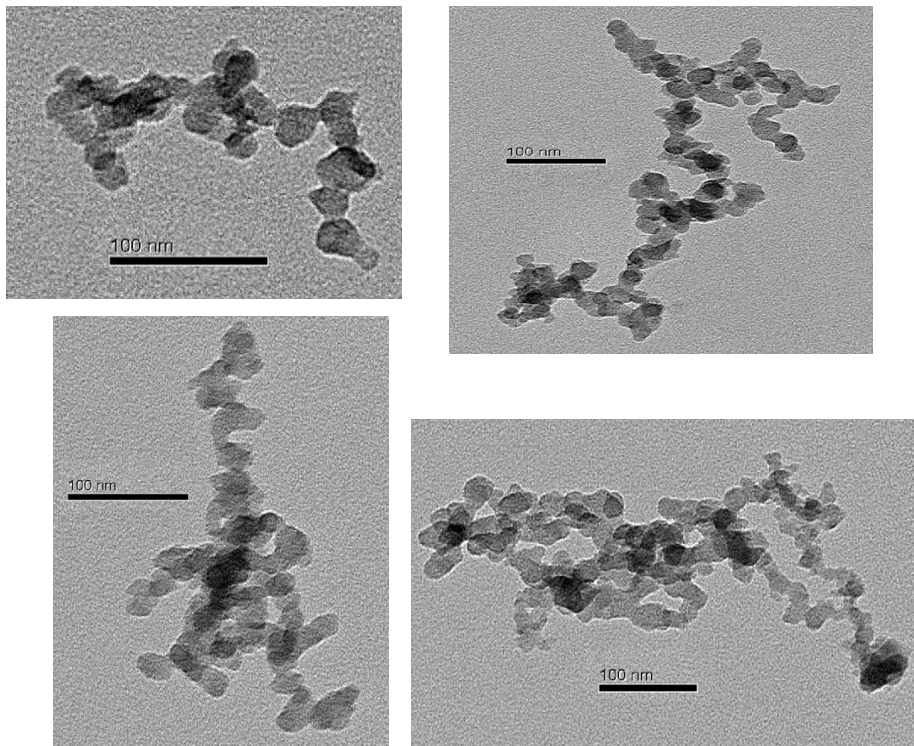


Figure J.2 : Clichés par Microscopie électronique par transmission (MET) des agrégats produits par le générateur CAST après sélection avec un DMA, pour un diamètre de mobilité électrique égal à 100 nm.

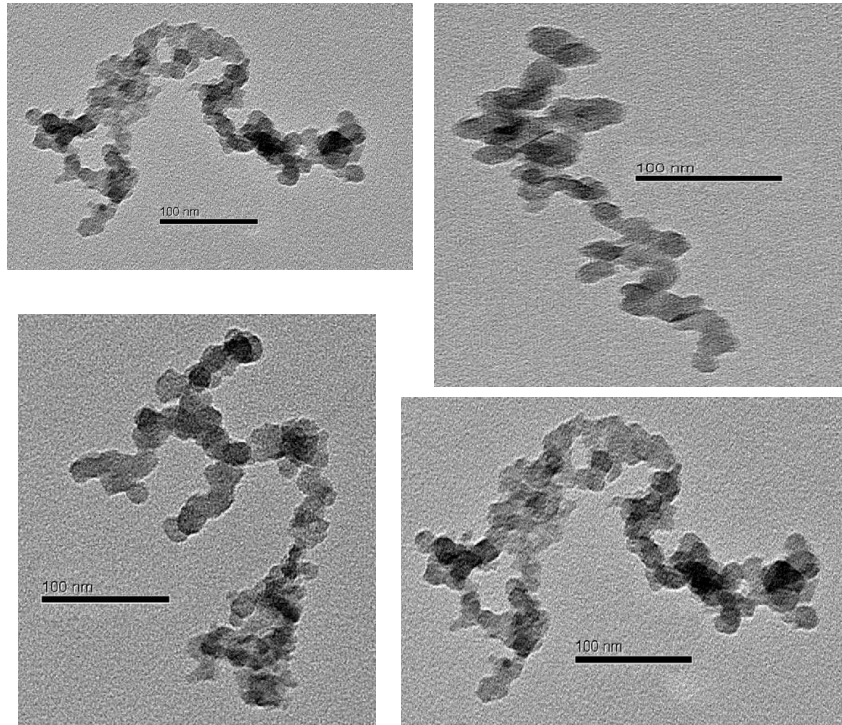


Figure J.3 : Clichés par Microscopie électronique par transmission (MET) des agrégats produits par le générateur CAST après sélection avec un DMA, pour un diamètre de mobilité électrique égal à 200 nm.

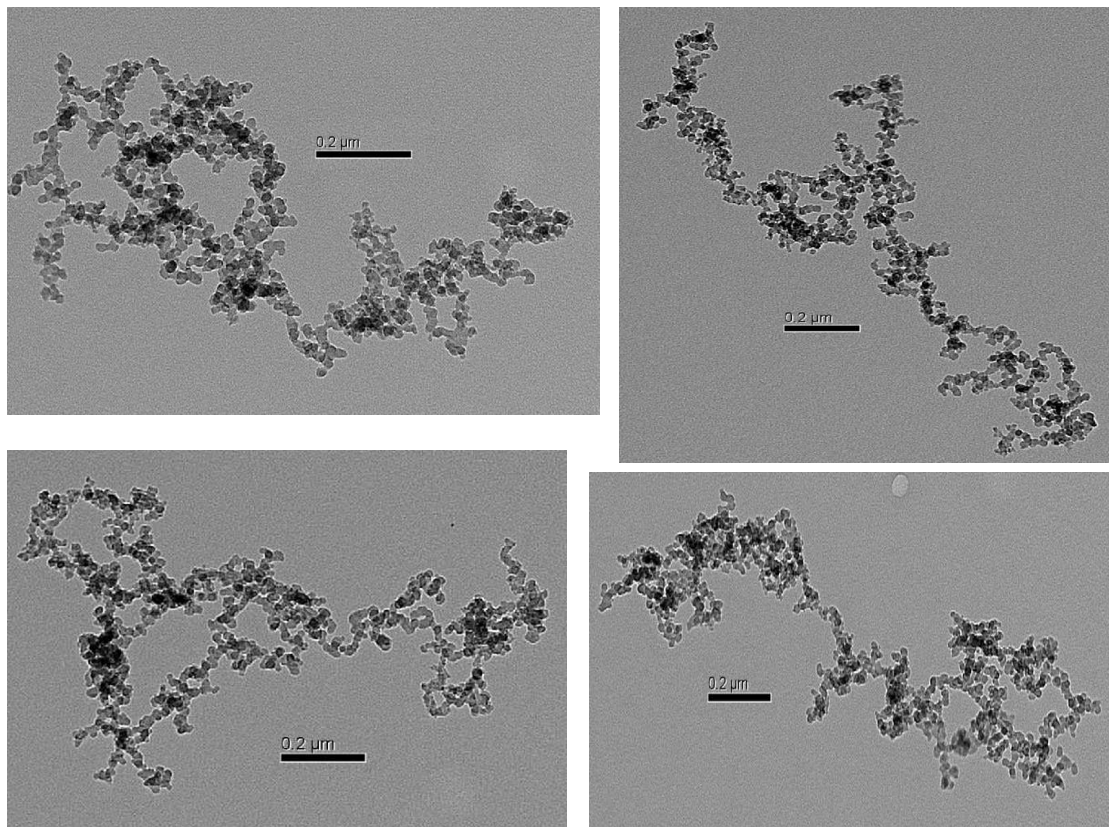


Figure J.4 : Clichés par Microscopie électronique par transmission (MET) des agrégats produits par le générateur CAST après sélection avec un DMA, pour un diamètre de mobilité électrique égal à 600 nm.

Le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suie de morphologie fractale

Résumé :

Ce travail a pour objectif d'améliorer la connaissance du dépôt des particules de combustion par thermophorèse.

Dans le but de montrer l'influence de la morphologie fractale d'un agrégat sur son comportement thermophorétique, un nouveau dispositif expérimental a été développé ; le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire (SMTC). Cet instrument permet de mesurer la vitesse moyenne de thermophorèse des particules dans une zone de sélection comprise entre une plaque chaude et une plaque froide. Pour cela, nous avons développé une fonction de transfert spécifique au principe de l'instrument sur la base des travaux existant sur les analyseurs différentiels de mobilité électrique.

Une qualification expérimentale du SMTC a été réalisée avec des billes de latex monodispersées de tailles comprises entre 64 nm et 500 nm. Le bon accord entre les vitesses de thermophorèse obtenues et la théorie de Beresnev et Chernyak (1995) nous a permis de valider le fonctionnement de l'instrument.

Par la suite, nous avons comparé les vitesses de thermophorèse expérimentales obtenues avec le SpectroMètre Thermophorétique Circulaire pour des particules sphériques et des agrégats produits par un générateur d'aérosol à combustion. Contrairement aux résultats obtenus avec les billes de latex, nous observons une augmentation de la vitesse de thermophorèse des agrégats avec leur diamètre de mobilité électrique.

Grâce à une étude morphologique des agrégats, nous avons remarqué que la vitesse de thermophorèse est dépendante du nombre de particules primaires de l'agrégat. Ces résultats expérimentaux confirment pour la première fois les données théoriques de Mackowski (2006) obtenues par des simulations Monte-Carlo. De plus, une comparaison avec les travaux de Messerer *et al.* (2003) montre que la vitesse de thermophorèse des agrégats semble indépendante de la taille des particules primaires.

Mots clés : vitesse de thermophorèse, thermophorèse, fonction de transfert, suies de combustion, agrégats.

Abstract

The SpectroMètre Thermophorétique Circulaire (SMTC), a new device for the study of the thermophoresis, Application on the fractals soot particles.

This work aims to improve the understanding of soot particle deposition by thermophoresis. In order to show the influence of the morphology of a fractal aggregate on its thermophoretic behavior, a new experimental device has been developed; the *SpectroMètre Thermophorétique Circulaire* (SMTC). This instrument is used to measure the mean thermophoretic velocity of particles selected between a hot plate and a cold plate thanks to a transfer function based on the geometry of the radial flow differential mobility analyser RF-DMA or SMEC (*Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire*).

For the experimental validation, effective thermophoretic velocities of monodispersed spherical latex particles for diameters ranging from 64 nm to 500 nm and a temperature gradient equal to 50 750 K/m are measured and compared with theoretical values. The good agreement between the experimental results and theoretical values of Beresnev and Chernyak (1995) helps us to validate the operation of the instrument.

Then we compare experimental thermophoretic velocity obtained with the SMTC for spherical particles and aggregates produced by a combustion aerosol generator. Contrary to the results obtained with the PSL particles, we observe that the thermophoretic velocity of aggregates increases with the electrical mobility diameter.

Thanks to a morphological study of the aggregates, we showed that the thermophoretic velocity depends on the number of primary particles of the aggregate. These experimental results confirm, for the first time, the theoretical data of Mackowski (2006) obtained by a Monte Carlo simulation. Moreover, a comparison with the experimental results of Messerer *et al.* (2003) shows that the thermophoretic velocity of aggregates seems independent of the primary particle size.

Keywords: Radial Flow Analyser, thermophoretic velocity, thermophoresis, transfer function, Soot particle, aggregates.