

**LE PROCESSUS DE CHARGE ÉLECTRIQUE:  
•DES AÉROSOLS NON RADIOACTIFS  
EN MILIEU FORTEMENT IONISÉ,  
•DES AÉROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS  
ÉMETTEURS BÊTA**

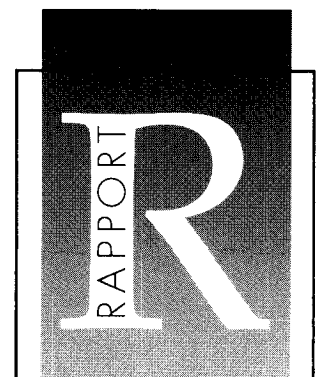
*par*  
**François GENSDARMES**

INSTITUT DE PROTECTION ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

DÉPARTEMENT DE PRÉVENTION ET D'ÉTUDE  
DES ACCIDENTS

SERVICE D'ÉTUDES ET DE RECHERCHES EN  
AÉROCONTAMINATION ET EN CONFINEMENT

CEA / Saclay



DIRECTION DES TECHNOLOGIES  
DE L'INFORMATION

**RAPPORT  
CEA-R-5941**

- Rapport CEA-R-5941

CEA Saclay

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire

Département de Prévention et d'Étude des Accidents

Service d'Études et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement

LES PROCESSUS DE CHARGE ÉLECTRIQUE :

- DES AÉROSOLS NON RADIOACTIFS EN MILIEU FORTEMENT IONISÉ
- DES AÉROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS ÉMETTEURS BÊTA.

par

François GENSDARMES

- Octobre 2000 -

# THESE

présentée à la

FACULTE DES SCIENCES DE CRETEIL  
UFR DE SCIENCES ET DE TECHNOLOGIE  
UNIVERSITE PARIS XII - VAL DE MARNE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS XII

mention : Physique des Aérosols

par

**François Gensdarmes**

## **LES PROCESSUS DE CHARGE ELECTRIQUE :**

- **DES AEROSOLS NON RADIOACTIFS EN MILIEU FORTEMENT IONISE,**
- **DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS EMETTEURS BETA.**

Soutenue le 11 juillet 2000, devant le jury constitué par :

Président :	M. A. RENOUX	Professeur à l'Université Paris XII - Val de Marne.
Membres :	M. C. REGNAUT	Professeur à l'Université Paris XII - Val de Marne.
	M. G. TYMEN	Professeur à l'Université de Bretagne Occidentale, Rapporteur.
	M. D. BOULAUD	Professeur à l'INSTN, Directeur de recherches au CEA, Rapporteur.
	M. J. F. FABRIES	H. D. R., chef du Laboratoire de Métrologie des Aérosols à l'INRS (Nancy).
	M. J. VENDEL	Chef du Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement au CEA (Saclay).

## RESUME

Les propriétés électriques des aérosols influencent fortement leur transport et leur dépôt dans une enceinte. En présence de petits ions bipolaires, on considère généralement que leur charge électrique est globalement nulle. Or plusieurs théories montrent que ce n'est pas le cas dans les milieux fortement ionisés, ou bien d'aérosols radioactifs. De telles situations peuvent être rencontrées dans l'hypothèse d'un accident grave touchant une installation nucléaire. Dans le cadre des études de sûreté menées à l'IPSN, notre objectif est d'étudier les propriétés électriques des aérosols en milieu fortement ionisé, ainsi que celles des aérosols radioactifs artificiels, afin de valider les théories existantes. Pour cela, nous avons réalisé un dispositif expérimental permettant de mesurer la distribution des charges électriques d'un aérosol non radioactif soumis à une forte irradiation gamma, de l'ordre de  $10^4$  Gy/h. Notre dispositif permet également d'étudier les ions produits dans un tel milieu. Nos résultats montrent une variation de la charge électrique de l'aérosol en milieu fortement ionisé. Elle augmente (algébriquement) avec la dose de rayonnement reçue. Nous relierons cette variation à celle des ions présents dans le gaz, ceci conformément aux modèles théoriques, bien qu'ils surestiment légèrement nos résultats. Dans le cas des aérosols radioactifs, nous avons conçu et réalisé un dispositif expérimental original, permettant d'étudier la distribution des charges électriques d'aérosols de  $^{137}\text{Cs}$ . Nos résultats montrent que la charge électrique dépend fortement des conditions d'évolution dans une enceinte. En effet, nous mettons en évidence un auto-chargement important lorsque les particules radioactives sont échantillonnées dans un milieu non "infini". Nos résultats sont qualitativement en accord avec le modèle théorique, qui néanmoins, sous-estime notablement l'auto-chargement, du fait des effets de paroi qui ne sont pas pris en compte.

### Mots clés

Aérosol, Ion, Charge électrique, Diffusion,  
Radioactif, Irradiation, Métrologie, Calcul numérique.

## ABSTRACT

The electrical properties of aerosols greatly influence their transport and deposition in a containment. In a bipolar ionic atmosphere, a neutral electric charge on aerosols is commonly assumed. However, many studies report a different charge distribution in some situations, like highly ionised atmosphere or in the case of radioactive aerosols. Such situations could arise from a hypothetical accident in a nuclear power plant. Within the framework of safety studies which are carried out at IPSN, our aims were the study of electrical properties of aerosols in highly ionised atmosphere, and the study of artificial radioactive aerosols, in order to suggest experimental validation of available theories. For this purpose, we designed an experimental device that allows us to measure non-radioactive aerosol charge distribution under high gamma irradiation, up to  $10^4$  Gy/h. With our experimental device we also studied the properties of small ions in the medium. Our results show a variation of the charge distribution in highly ionised atmosphere. The charge increases with the dose of gamma ray. We have related this variation with the one of the small ions in the gases, according to theoretical prediction. However, the model overestimates slightly our experimental results. In the case of the radioactive aerosols, we have designed an original experimental device, which allows us to study the charge distribution of a  $^{137}\text{Cs}$  aerosol. Our results show that the electric charging of such aerosols is strongly dependent on evolution parameters in a containment. So, our results underline a great enhancement of self-charging of particles which are sampled in a confined medium. Our results are qualitatively in agreement with the theoretical model; nevertheless the latter underestimates appreciably the self-charging, owing to the fact that wall effects are not taken into account.

### Key words

Aerosol, Ion, Electric charging, Diffusion,  
Radioactive, Irradiation, Measurement, Numerical simulation.

## Remerciements

Cette thèse a été réalisée à l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN) du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), au sein du Département de Prévention et d'Etude des Accidents (DPEA) dirigé par Monsieur Natta. Qu'il trouve ici l'expression de mon respect et de mes remerciements.

Je sais gré à Monsieur Pourprix, anciennement chef du Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement (SERAC) et maintenant adjoint à la direction du DPEA, de m'avoir permis de réaliser ce travail de recherche au SERAC. Je le remercie respectueusement pour l'intérêt porté à mon travail.

J'adresse mes sincères remerciements au Professeur Renoux, directeur du Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations (LPATC) de l'Université Paris XII, pour m'avoir donné la possibilité d'effectuer un Doctorat. Je tiens à lui témoigner ma plus haute gratitude pour ses conseils et son soutien tout au long de ces trois années. Je lui suis reconnaissant de la sympathie et de l'encouragement qu'il témoigne à l'équipe des doctorants en Physique des aérosols. Je le remercie également pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de diriger cette thèse et d'en présider le jury.

Je tiens à remercier particulièrement Monsieur Boulaud, Professeur à l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (INSTN), directeur de recherche au CEA et chef du SERAC, pour avoir initié ce travail de recherche et m'avoir accueilli au sein du SERAC. Je lui adresse ma plus vive reconnaissance pour les nombreux conseils, le soutien et la confiance qu'il m'a prodiguée au cours de ces trois années passées dans son service. Je le remercie pour sa disponibilité et les discussions que nous avons eues sur ce travail. Qu'il me soit également permis de le remercier pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de faire partie de ce jury et d'être rapporteur de cette thèse.

J'ai l'honneur de remercier le Professeur Tymen, directeur du Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère-Hydrosphère (LRAAH) de l'Université de Bretagne Occidentale pour avoir accepté de faire partie de ce jury et d'être rapporteur de cette thèse. Je lui exprime ma profonde gratitude pour l'intérêt porté à mes travaux.

Je suis très honoré que le Professeur Regnaut, Président de la commission de Physique de l'Université Paris XII, ait accepté de faire partie de ce jury. Qu'il trouve ici l'expression de mes sincères remerciements.

J'ai le plaisir de remercier vivement Monsieur Fabriès, chef du Laboratoire de Métrologie des Aérosols à l'Institut National de Recherches en Sécurité (INRS), pour avoir accepté de faire partie de ce jury. Qu'il trouve ici l'hommage de ma reconnaissance pour l'intérêt porté à mes travaux lors de nos rencontres dans les différents congrès scientifiques.

Je rends hommage à Monsieur Vendel, chef du Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols et du Confinement (LPMAC), pour le privilège qu'il m'a fait en acceptant de faire partie de ce jury. Je le remercie chaleureusement pour l'intérêt porté à cette thèse, et pour les conditions de travail particulièrement favorables que j'ai rencontrées dans son laboratoire au cours de ces trois années.

Je suis très reconnaissant à Madame Grivaud et à Monsieur Cétier, chercheurs au LPMAC pour leur aide, leur soutien et leur disponibilité lors de mes expériences dans leurs installations respectives EPICEA et IRMA. Je les remercie également de leur amitié au cours de ces trois années. Qu'ils trouvent ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je tiens également à remercier Messieurs Chouard, Amevor, Pagliardini, et Lucius, techniciens au LPMAC pour leur sympathie et leur aide précieuse dans la réalisation de mes travaux expérimentaux.

Je suis également redevable à Mademoiselle Malet, Docteur en Physique des aérosols et chercheur au LPMAC pour son émulation et son aide lors des calculs numériques réalisés avec TRIO EF. Je la remercie chaleureusement pour sa disponibilité et sa sympathie.

Je remercie vivement Messieurs Witschger, Docteur en Physique des aérosols et chercheur au LPMAC et Morfin, Doctorant en Physique, pour leur soutien et leur amitié pendant ces trois années.

J'adresse également mes remerciements à Monsieur Sabroux, conseiller scientifique au SERAC, que j'ai eu le privilège de côtoyer pendant ces trois années, pour son enthousiasme, ses conseils et les discussions que nous avons eues. Qu'il trouve ici l'expression de mon profond respect.

Mes remerciements vont également aux autres membres du SERAC, du LPATC, aux doctorants et stagiaires. Leurs encouragements et leur sympathie m'ont été précieux tout au long de ces trois années.

INTRODUCTION	1
<b>CHAPITRE I : LES PROPRIETES ELECTRIQUES DES AEROSOLS</b>	
<b>I. Introduction</b>	5
<b>II. La mobilité des particules</b>	5
II.1. <i>La mobilité dynamique</i>	5
II.2. <i>La mobilité électrique</i>	6
<b>III. Eléments théoriques sur les propriétés des ions</b>	7
III.1. <i>La classification des ions</i>	7
III.2. <i>Les méthodes de production des petits ions</i>	9
III.3. <i>L'évolution des ions dans le gaz</i>	14
<b>IV. La métrologie des petits ions dans un gaz</b>	19
IV.1. <i>La mesure de la concentration</i>	19
IV.2. <i>La mesure de la conductibilité électrique du milieu</i>	21
IV.3. <i>La mesure de la mobilité électrique des petits ions</i>	23
IV.4. <i>Conclusion</i>	24
<b>V. Théorie de la charge électrique des aérosols non radioactifs par diffusion d'ions bipolaires</b>	25
V.1. <i>Le coefficient de fixation ion - aérosol</i>	25
V.2. <i>Les équations d'évolution de la charge électrique d'un aérosol</i>	29
V.3. <i>L'état stationnaire de la charge électrique d'un aérosol</i>	32
V.4. <i>La durée de mise à l'état stationnaire</i>	40
V.5. <i>La variation de la charge moyenne d'un aérosol en fonction de l'intensité d'ionisation</i>	41
<b>VI. La métrologie de la charge électrique des aérosols</b>	46
VI.1. <i>Introduction</i>	46
VI.2. <i>Les méthodes dynamiques de mesure directe de la charge électrique</i>	47
VI.3. <i>Les analyseurs de mobilités électriques (ou méthodes dynamiques indirectes)</i>	51
VI.4. <i>Synthèse des résultats expérimentaux</i>	59
VI.5. <i>Conclusion</i>	61
<b>VII. Théorie de la charge électrique des aérosols radioactifs</b>	62
VII.1. <i>Introduction</i>	62
VII.2. <i>Description du processus de charge d'un aérosol radioactif</i>	62
VII.3. <i>Les équations d'évolution de la charge électrique d'un aérosol radioactif</i>	70
VII.4. <i>La distribution stationnaire des charges électriques d'un aérosol radioactif</i>	73

<b>VIII. Résultats expérimentaux existants sur la mesure de la charge électrique des aérosols radioactifs</b>	79
VIII.1. <i>Les expériences sur les émetteurs bêta</i>	80
VIII.2. <i>Les expériences sur les émetteurs alpha</i>	81
VIII.3. <i>Synthèse des résultats expérimentaux sur la charge électrique des aérosols radioactifs</i>	83
<b>IX. Conclusions</b>	85

## CHAPITRE II : ETUDE EXPERIMENTALE DES PROPRIETES DES IONS EN MILIEU FORTEMENT IONISE

<b>I. Présentation de l'étude expérimentale</b>	87
I.1. <i>Introduction</i>	87
I.2. <i>Dispositif et méthode expérimentale</i>	87
<b>II. Mesure des propriétés des ions produits par un rayonnement alpha</b>	90
II.1. <i>Caractéristiques de la source alpha</i>	90
II.2. <i>Mesure des concentrations ioniques et du rapport d'asymétrie</i>	93
II.3. <i>Evolution du rapport d'asymétrie et des concentrations ioniques dans un conduit cylindrique en aval d'une source d'ions</i>	103
<b>III. Mesure des propriétés des ions produits par un rayonnement gamma</b>	112
III.1. <i>Dispositif expérimental pour l'irradiation gamma</i>	112
III.2. <i>Mesure du rapport d'asymétrie et des concentrations ioniques</i>	116
III.3. <i>Evolution du rapport d'asymétrie en fonction de la concentration ionique et de la dose</i>	123
<b>IV. Conclusion</b>	125

## CHAPITRE III : ETUDE EXPERIMENTALE DE LA CHARGE ELECTRIQUE DES AEROSOLS EN MILIEU FORTEMENT IONISE

<b>I. Présentation de l'étude expérimentale</b>	126
I.1. <i>Principe de mesure de la distribution des charges électriques de l'aérosol</i>	126
I.2. <i>Dispositif expérimental pour mesurer la distribution des charges électriques avec un SMEC d'ordre 1</i>	129
I.3. <i>Dispositif expérimental pour mesurer la distribution des charges électriques avec un SMEC d'ordre 2</i>	133
I.4. <i>Comparaison des systèmes de mesures utilisant les SMEC d'ordre 1 et 2</i>	136



<b>II. Mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol obtenue avec une source alpha</b>	137
II.1. <i>Dispositif expérimental</i>	137
II.2. <i>Résultats expérimentaux</i>	138
II.3. <i>Evolution de la distribution des charges de l'aérosol dans un conduit cylindrique en aval d'une source d'ions</i>	140
<b>III. Mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol obtenue par irradiation gamma</b>	145
III.1. <i>Dispositif expérimental</i>	145
III.2. <i>Résultats expérimentaux</i>	148
III.3. <i>Variation de la charge électrique de l'aérosol en fonction de l'intensité d'ionisation</i>	152
<b>IV. Conclusion</b>	157
<b>CHAPITRE IV : ETUDE EXPERIMENTALE DE LA CHARGE ELECTRIQUE DES AEROSOLS RADIOACTIFS</b>	
<b>I. Présentation de l'étude</b>	158
<b>II. Dimensionnement de l'expérience</b>	160
II.1. <i>La génération de l'aérosol radioactif</i>	161
II.2. <i>L'évolution et l'échantillonnage de l'aérosol radioactif</i>	167
II.3. <i>L'analyse de la distribution des charges électriques de l'aérosol</i>	172
II.4. <i>Schéma du dispositif expérimental</i>	173
<b>III. Validation en inactif du dispositif expérimental</b>	175
III.1. <i>La génération de l'aérosol non radioactif simulant</i>	175
III.2. <i>La neutralisation de l'aérosol</i>	179
III.3. <i>La mesure de la distribution initiale des charges électriques de l'aérosol</i>	183
III.4. <i>L'échantillonnage de l'aérosol entre la génération et la mesure</i>	189
<b>IV. Mesure de la distribution des charges d'un aérosol radioactif contenant du <sup>137</sup>Cs</b>	192
IV.1. <i>Procédure expérimentale et détermination des paramètres de l'aérosol radioactif</i>	192
IV.2. <i>Résultats expérimentaux</i>	193
<b>V. Conclusion</b>	202
<b>CONCLUSION</b>	203

## Liste des figures

Figure 1.1 - Schéma de principe d'un compteur d'ions cylindrique.	20
Figure 1.2 - Mesure idéale de la conductibilité électrique.	22
Figure 1.3 - Comparaison des différentes expressions théoriques de la distribution des charges d'un aérosol en milieu bipolaire.	38
Figure 1.4 - Evolution de la charge moyenne en fonction de l'intensité d'ionisation.	44
Figure 1.5 - Synthèse des différentes méthodes de mesure de la charge électrique d'un aérosol.	47
Figure 1.6 - Schéma d'une cellule d'observation avec un champ électrique alternatif.	48
Figure 1.7 - Schéma de principe d'un analyseur de mobilité électrique.	51
Figure 1.8 - Schéma de principe d'un système de mesure de la charge électrique utilisant un analyseur de mobilité d'ordre 0.	52
Figure 1.9 - Fonction de transfert d'un analyseur de mobilité d'ordre 0.	54
Figure 1.10 - Schéma d'un précipitateur électrostatique plan à écoulement longitudinal.	55
Figure 1.11- Schéma de principe d'un analyseur d'ordre 1 à écoulement radial (SMEC).	56
Figure 1.12- Fonction de transfert d'un analyseur d'ordre 1.	56
Figure 1.13- Schéma de principe d'un analyseur d'ordre 2 à écoulement radial (SMEC différentiel).	57
Figure 1.14 - Fonction de transfert d'un analyseur d'ordre 2 pour $q_f=q_e$ et $q_a=q_m$ .	57
Figure 1.15 - Processus de chargement électrique d'un aérosol radioactif émetteur alpha ou bêta.	63
Figure 1.16 - Schéma du mécanisme d'auto chargement des aérosols radioactifs activés par du radon.	65
Figure 1.17 - Schéma du parcours moyen d'un rayonnement dans un tube.	69
Figure 1.18 - Variation de la charge moyenne à l'état stationnaire en fonction de l'activité des particules.	78
Figure 1.19 - Variation de la charge moyenne à l'état stationnaire en fonction de la concentration des particules	78
Figure 1.20 - Evolution de la charge moyenne en fonction du diamètre de l'aérosol.	79
Figure 2.1 - Schéma du condensateur cylindrique.	88
Figure 2.2 - Montage expérimental pour la mesure du paramètre d'asymétrie obtenu avec des ions produits par des sources émettrices alpha.	89
Figure 2.3 - Spectre angulaire de l'énergie des particules alpha émises par les sources d'Américium 241.	91
Figure 2.4 - Schéma du support de sources et de la zone d'ionisation.	91
Figure 2.5 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit égal à 14,4 l/min.	94
Figure 2.6 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit égal à 41,9 l/min.	95
Figure 2.7 - Champ électrique créé par une charge d'espace dans un conduit cylindrique.	96
Figure 2.8 - Evolution des concentrations en ions positifs et négatifs en aval d'une source d'ions.	104

Figure 2.9 - Comparaison entre l'évolution des concentrations en ions déterminées expérimentalement et celle déterminée par la recombinaison des ions.	105
Figure 2.10 - Profils des concentrations ioniques calculés pour différentes distances en aval d'une source d'ions.	108
Figure 2.11 - Evolution des concentration ioniques dans un conduit cylindrique.	109
Figure 2.12 - Evolution axiale du rapport des concentrations ioniques.	110
Figure 2.13 - Evolution radiale du rapport entre les concentrations ioniques.	110
Figure 2.14 - Schéma du dispositif expérimental pour la mesure du rapport d'asymétrie sous irradiation gamma.	113
Figure 2.15 - Photo de la cellule d'irradiation.	114
Figure 2.16 - Photo du condensateur protégé par le château de plomb dans la cellule d'irradiation.	114
Figure 2.17 - Mesure du débit de dose dans le volume d'échantillonnage.	115
Figure 2.18 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit de dose égal à 24 Gy/h.	116
Figure 2.19 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit de dose égal à 7000 Gy/h.	117
Figure 2.20 - Variation du paramètre d'asymétrie en fonction du temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation.	121
Figure 2.21 - Variation du paramètre d'asymétrie en fonction de la concentration ionique.	123
Figure 2.22 - Variation du paramètre d'asymétrie en fonction de la dose reçue dans la zone d'ionisation.	124
Figure 3.1 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution des charges électriques avec un analyseur de mobilité d'ordre 1.	130
Figure 3.2 - Distributions cumulées en mobilités électriques obtenue avec un SMEC d'ordre 1.	132
Figure 3.3 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution des charges électriques avec un analyseur de mobilité d'ordre 2.	133
Figure 3.4 - Distributions en mobilités électriques obtenues avec un SMEC d'ordre 2.	135
Figure 3.5 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol.	137
Figure 3.6 - Distribution des charges électriques pour un aérosol monodispersé de diamètre égal à 0,30 $\mu\text{m}$ .	139
Figure 3.7 - Distribution des charges électriques à 5 cm en aval de la source d'ions.	141
Figure 3.8 - Distribution des charges électriques à 327 cm en aval de la source d'ions.	141
Figure 3.9 - Evolution de la charge moyenne d'un aérosol en aval d'une source d'ions.	142
Figure 3.10 - Schéma du dispositif expérimental pour la mesure locale de la charge électrique de l'aérosol.	143

Figure 3.11 - Evolution de la charge moyenne de l'aérosol au centre du conduit et au voisinage de la paroi en aval d'une source d'ions.	144
Figure 3.12 - Schéma du dispositif expérimental pour mesurer la charge électrique des aérosols en milieu fortement ionisé.	146
Figure 3.13 - Photographie du dispositif expérimental.	147
Figure 3.14 - Distribution des charges électriques obtenue pour un aérosol de 0,10 $\mu\text{m}$ et avec un débit de dose égal à 24 Gy/h.	148
Figure 3.15 - Distribution des charges électriques obtenue pour un aérosol de 0,10 $\mu\text{m}$ et avec un débit de dose égal à 7000 Gy/h.	149
Figure 3.16 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de 0,30 $\mu\text{m}$ et un débit de dose égal à 24 Gy/h.	150
Figure 3.17 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de 0,30 $\mu\text{m}$ et un débit de dose égal à 100 Gy/h.	151
Figure 3.18 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de 0,30 $\mu\text{m}$ et un débit de dose égal à 7000 Gy/h.	151
Figure 3.19 - Variation de la charge moyenne d'un aérosol en fonction du logarithme du paramètre d'asymétrie.	153
Figure 3.20 - Variation de la charge moyenne de l'aérosol en fonction du paramètre de charge $Q/C^2$ .	156
Figure 4.1 - Schéma du système de production de gouttelettes par un orifice vibrant.	163
Figure 4.2 - Variation de la distribution des charges électriques en fonction du nombre de paires d'ions créées par désintégrations.	169
Figure 4.3 - Schéma du volume d'échantillonnage de l'aérosol radioactif.	171
Figure 4.4 - Schéma du dispositif expérimental pour l'étude de la charge électrique des aérosols radioactifs.	173
Figure 4.5 - Distribution granulométrique de l'aérosol simulant.	177
Figure 4.6 - Montage expérimental pour la mesure du paramètre d'asymétrie obtenu avec la source de neutralisation du générateur à orifice vibrant	180
Figure 4.7 - Mesure du paramètre d'asymétrie entre les ions produits par le système de neutralisation du générateur à orifice vibrant.	181
Figure 4.8 - Distribution en mobilités de l'aérosol simulant.	185
Figure 4.9 - Distribution initiale de charges électriques de l'aérosol simulant.	187
Figure 4.10 - Vue générale de l'installation en boîte à gants.	190
Figure 4.11 - Vue du générateur d'aérosol et du volume d'échantillonnage.	191
Figure 4.12 - Vue du système de mesure de la distribution des charges électriques.	191
Figure 4.13 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre $d_p=0,82 \mu\text{m}$ , d'activité spécifique $\eta=1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq p.}^{-1}$ avec $I \approx 100 \text{ p.i. dès}^{-1}$ .	195
Figure 4.14 - Influence de la variation de la concentration sur la distribution des charges électriques de l'aérosol radioactif.	196
Figure 4.15 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre $d_p=0,82 \mu\text{m}$ , d'activité spécifique $\eta=1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq p.}^{-1}$ avec $I \approx 5000 \text{ p.i. dès}^{-1}$ .	197

Figure 4.16 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre $d_p=1,05 \mu\text{m}$ , d'activité spécifique $\eta=3,2 \times 10^{-3} \text{ Bq p.}^{-1}$ avec $I \approx 5000 \text{ p.i. d\grave{e}s}^{-1}$ .	199
Figure 4.17 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre $d_p=1,07 \mu\text{m}$ , d'activité spécifique $\eta=3,2 \times 10^{-3} \text{ Bq p.}^{-1}$ avec $I \approx 100 \text{ p.i. d\grave{e}s}^{-1}$ .	200
Figure 4.18 - Variation de la distribution des charges électriques en fonction de l'activité spécifique des particules.	201
Figure A1 - Dispositif de production d'aérosols monodispersés utilisant un pulvérisateur et un classificateur électrostatique.	208
Figure A2 - Dispositif de production d'aérosols monodispersés utilisant un pulvérisateur et une batterie de diffusion.	209
Figure B1 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de diamètre égal à $0,204 \mu\text{m}$ .	210
Figure B2 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de diamètre égal à $0,497 \mu\text{m}$ .	211
Figure C1 - Etalonnage du SMEC pour la détermination du diamètre des particules.	212
Figure D1 - Effet de la gravité dans le SMEC d'ordre 1 pour l'aérosol simulant.	215
Figure E1 - Mesure de débits de doses autour de la source de $^{85}\text{Kr}$ .	217
Figure G1 - Fonction de transfert d'un analyseur de mobilité dynamique d'ordre 0.	219
Figure H1 - Schéma du montage expérimental pour l'étude du remplissage et de la purge de l'aérosol.	220
Figure H2 - Variation de la concentration de l'aérosol pendant la purge aéraulique du volume réservoir.	222
Figure H3 - Schéma du montage expérimental pour l'étude de l'évolution de la concentration et du vieillissement de l'aérosol.	224
Figure H4 - Mesure de l'évolution de la concentration de l'aérosol dans le volume de vieillissement pour un débit d'injection égal à $0,3 \text{ l/min}$ .	225
Figure H5 - Mesure de l'évolution de la concentration de l'aérosol dans le volume de vieillissement pour un débit d'injection égal à $0,3 \text{ l/min}$ .	226
Figure H6 - Variation de la concentration pour un débit de $0,2 \text{ l/min}$ .	227
Figure H7 - Variation de la concentration pour un débit de $0,2 \text{ l/min}$ .	228

## Liste des tableaux

Tableau 1.1 - Comparaison des effets dynamiques et électriques.	7
Tableau 1.2 - Synthèse des différentes théories sur les coefficients de fixation.	29
Tableau 1.3 - Synthèse des différentes expressions de la charge électrique en milieu bipolaire.	45
Tableau 1.4 - Avantages et inconvénient des différents analyseurs de mobilité électrique.	58
Tableau 1.5 - Synthèse des différentes études sur la charge électrique des aérosols en milieu bipolaire.	60
Tableau 1.6 - Synthèse des principaux résultats expérimentaux sur la charge électrique des aérosols radioactifs	84
Tableau 2.1- Nombre de Reynolds de l'écoulement pour les différents débits d'analyses.	93
Tableau 2.2 - Mesures du paramètre d'asymétrie et des concentrations ioniques pour différents débits d'analyse.	99
Tableau 2.3 - Mesure de la mobilité des ions positifs et négatifs pour différentes doses d'irradiation.	100
Tableau 2.4 - Concentrations en ions positifs et négatifs dans le volume d'échantillonnage.	118
Tableau 2.5 - Mobilités des ions pour différents débit de dose.	120
Tableau 2.6 - Evolution du paramètre d'asymétrie en fonction du temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation.	122
Tableau 2.7 - Mobilité des ions positifs et négatifs pour différents temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation.	122
Tableau 3.1 - Charge moyenne de l'aérosol en fonction du débit de dose et du diamètre des particules.	152
Tableau 4.1 - Concentrations et mobilités électriques des ions produits dans le système de neutralisation du générateur à orifice vibrant.	182

# Nomenclature

## Lettres latines

- a : longueur radiale du SMEC (m).  
 $A_s$  : activité spécifique du matériau ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ).  
B : mobilité dynamique de la particule ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{N}^{-1}$ ).  
c : capacité du condensateur (F).  
 $C_j$  : concentration de particules portant j charges élémentaires ( $\text{m}^{-3}$ ).  
 $C_t = \sum_i C_i$  : concentration totale de l'aérosol ( $\text{m}^{-3}$ ).  
Cu : coefficient de correction de Cuningham.  
 $C_v$  : concentration volumique en impureté de la solution.  
da : diamètre aérodynamique (m).  
dg : diamètre de gouttelettes (m).  
D : coefficient de diffusion des ions indifférenciés ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ).  
Dd : débit de dose ( $\text{Gy h}^{-1}$ ).  
Dp : diamètre de la particule (m).  
 $D_e$  : diamètre externe de l'électrode du condensateur (m).  
 $D_i$  : diamètre interne de l'électrode du condensateur (m).  
 $D_{\pm}$  : coefficient de diffusion des ions positifs ou négatifs ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ).  
e : la charge élémentaire (C).  
E : champ électrique ( $\text{V m}^{-1}$ ).  
 $E_i$  : énergie du rayonnement ionisant (MeV).  
 $E_{\text{max}}$  : énergie maximale du spectre d'émission du radioélément (eV).  
f : fréquence de la céramique du générateur d'aérosols ( $\text{s}^{-1}$ ).  
F : force en N.  
G : paramètre géométrique des analyseurs de mobilité (m).  
i : intensité du courant (A).  
 $i_{\pm}$  : courant dû aux ions positifs ou négatifs (A).  
I : nombre de paires d'ions créés par une désintégration radioactive alpha ou bêta.  
 $I_{\gamma}$  : Intensité d'ionisation par un rayonnement gamma (p.i.  $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ).  
j : nombre de charges élémentaires portées par une particule.  
J : nombre moyen de charges élémentaires portées par les particules.  
 $\bar{J}$  : charge moyenne des particules d'aérosols (C).  
 $j_{\text{max}}$  : nombre maximum de charges électriques analysable.  
k : constante de Boltzmann.  
Kn : nombre de Knudsen.  
L : longueur de l'électrode du condensateur (m).  
m : taux d'auto chargement (charges élémentaires / s).  
n : concentration en ions positifs ou négatifs indifférenciés ( $\text{m}^{-3}$ ).  
 $n_{\pm}$  la concentration en ions positifs ou négatifs ( $\text{m}^{-3}$ ).  
 $n_{\infty}$  : concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre ( $\text{m}^{-3}$ ).  
 $n_t$  : concentration totale en ions ( $\text{m}^{-3}$ ).  
 $\bar{n}$  : concentration moyenne des ions ( $\text{m}^{-3}$ ).  
p : nombre de charges élémentaires résiduelles sur la particule par désintégration.  
q : taux de production de paires d'ions (p.i.  $\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ).  
Q : nombre de petits ions susceptibles d'être fixés sur l'aérosol ( $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ).

$Q_a$  : débit d'aérosol ( $m^{-3} s^{-1}$ ).  
 $Q_e$  : débit d'air de sortie de l'analyseur de mobilité électrique ( $m^{-3} s^{-1}$ ).  
 $Q_f$  : débit d'air filtré dans l'analyseur de mobilité électrique ( $m^{-3} s^{-1}$ ).  
 $Q_m$  : débit d'aérosol monodispersé extrait de l'analyseur de mobilité électrique ( $m^{-3} s^{-1}$ ).  
 $Q_t$  : débit total dans l'analyseur de mobilité d'ordre 1 ( $m^{-3} s^{-1}$ ).  
 $Q_v$  : débit volumique ( $m^3 s^{-1}$ ).  
 $r_p$  : rayon de la particule d'aérosol (m).  
 $Re$  : nombre de Reynolds.  
 $Res$  : résolution de l'analyseur de mobilité.  
 $R_\alpha$  : parcours du noyau d'hélium dans l'air (cm).  
 $R_\beta$  : parcours de l'électron ( $kg m^{-2}$ ).  
 $S$  : surface caractéristique ( $m^2$ ).  
 $T$  : température (K).  
 $T_r$  : taux de renouvellement ( $s^{-1}$ ).  
 $U$  : tension (V).  
 $v$  : volume ( $m^3$ ).  
 $V$  : vitesse de l'écoulement aéraulique ( $m s^{-1}$ ).  
 $V_p$  : vitesse de la particule ( $m s^{-1}$ ).  
 $V_e$  : vitesse de dérive d'une particule due au champ électrique ( $m s^{-1}$ ).  
 $V_s$  : vitesse de sédimentation d'une particule ( $m s^{-1}$ ).  
 $V_t$  : vitesse d'entraînement d'une particule due à la force de traînée ( $m s^{-1}$ ).  
 $w_i$  : potentiel d'ionisation des molécules (eV).  
 $X$  : paramètre d'asymétrie.  
 $y$  : paramètre de charge de l'aérosol radioactif.  
 $Z$  : mobilité électrique de la particule ( $m^2 V^{-1} s^{-1}$ ).

## Lettres Grecques

$\alpha$  : coefficient de recombinaison ( $m^3 s^{-1}$ ).  
 $\beta_\pm$  : coefficients de fixation des petits ions positifs ou négatifs ( $m^3 s^{-1}$ ).  
 $\beta_{-1 j+1}$  : coefficient de fixation d'un petit ion négatif sur une particule portant  $j+1$  charges ( $m^3 s^{-1}$ ).  
 $\beta_{1 j-1}$  : coefficient de fixation d'un petit ion positif sur une particule portant  $j-1$  charges ( $m^3 s^{-1}$ ).  
 $\gamma$  : conductibilité électrique totale du gaz ( $\Omega^{-1} m^{-1}$ ).  
 $\gamma_\pm$  : conductibilité unipolaire des ions positifs ou négatifs ( $\Omega^{-1} m^{-1}$ ).  
 $\delta E$  : énergie électrostatique d'une particule (J).  
 $\epsilon_0$  : permittivité du vide.  
 $\eta$  : activité spécifique d'une particule (Bq / particule).  
 $\lambda$  : paramètre sans dimension de l'aérosol.  
 $\lambda_i$  : libre parcours moyen des ions dans le gaz (m).  
 $\mu$  : mobilité électrique des ions indifférenciés ( $m^2 V^{-1} s^{-1}$ ).  
 $\mu_a$  : coefficient d'absorption linéaire des électrons bêta ( $m^{-1}$ ).  
 $\mu_c$  : mobilité électrique critique de l'analyseur ( $m^2 V^{-1} s^{-1}$ ).  
 $\mu_m$  : coefficient d'atténuation linéaire des photons ( $m^{-1}$ ).  
 $\mu_v$  : viscosité dynamique du fluide ( $Pa \cdot s$ ).  
 $\bar{\mu}$  : mobilité électrique moyenne des ions ( $m^2 V^{-1} s^{-1}$ ).



$\mu_{\pm}$  : mobilités électriques des petits ions positifs ou négatifs  $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ .  
 $\nu$  : viscosité cinématique du fluide ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ).  
 $\rho$  : densité de charges ( $\text{C m}^{-3}$ ).  
 $\rho_g$  : masse volumique du gaz ( $\text{kg m}^{-3}$ ).  
 $\rho_m$  : masse volumique du matériau ( $\text{kg m}^{-3}$ ).  
 $\sigma$  : écart type de la distribution de charges (nombre de charges élémentaires).  
 $\sigma_e$  : section efficace de la particule ( $\text{m}^2$ ).  
 $\tau$  : temps caractéristique du processus de charge de l'aérosol radioactif (s).  
 $\tau_d$  : temps de relaxation dynamique (s).  
 $\tau_D$  : constante de temps du processus de diffusion (s).  
 $\tau_e$  : temps de mise à l'équilibre de la distribution des charges (s).  
 $\tau_f$  : constante de temps caractéristique de la fixation des petits ions sur l'aérosol (s).  
 $\tau_r$  : constante de temps du processus de recombinaison (s).  
 $\phi_s$  : débit de fluence (photons  $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ).  
 $\bar{\phi}_{\pm}$  : flux surfacique d'ions positifs ou négatifs ( $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$ )  
 $\varphi$  : flux d'ions sur la surface des particules (nombre de charges par seconde).  
 $\varphi_{\pm}$  : flux d'ions positifs ou négatifs sur la surface des particules  
 (nombre de charges par seconde).  
 $\omega$  : nombre d'électrons secondaires émis par désintégration.

# INTRODUCTION

Les aérosols, omniprésents dans notre environnement, peuvent être d'origine naturelle ou artificielle. Parmi eux, certains sont radioactifs, c'est à dire qu'ils sont formés de matière contenant un ou plusieurs isotopes radioactifs.

Parmi les aérosols d'origine naturelle, on trouve principalement les descendants du radon, qui depuis des temps immémoriaux, émane du radium contenu dans la croûte terrestre.

Les aérosols radioactifs d'origine artificielle sont apparus beaucoup plus récemment dans l'atmosphère, qu'il s'agisse des retombées des premières explosions atomiques ou des rejets des installations nucléaires civiles en cas d'incident ou d'accident ; le plus grave étant celui de Tchernobyl en 1986. Toutefois, les aérosols radioactifs sont aussi présents dans les installations nucléaires en fonctionnement normal tout au long du "cycle du combustible". En effet, on trouve de tels aérosols, depuis la mine d'uranium avec les poussières de minerai, jusqu'aux usines de retraitement où sont manipulés, avec des précautions appropriées, des produits radioactifs susceptibles d'être mis en suspension dans un gaz porteur. Enfin, les aérosols radioactifs peuvent être utilisés en laboratoire pour diverses applications, comme par exemple en médecine nucléaire pour les études d'inhalation.

Signalons que, généralement, les processus mécaniques ou thermiques qui conduisent à la formation de ces aérosols entraînent un chargement électrique non négligeable des particules, par exemple du fait des phénomènes de friction ou bien de l'induction électrique, et qu'il est nécessaire de bien connaître les propriétés électriques des aérosols pour mieux prévoir leur comportement.

Les caractéristiques physiques d'un aérosol déterminent son évolution dans un milieu. Ainsi les grosses particules (de dimensions supérieures à  $1\mu\text{m}$ ) seront principalement soumises à la pesanteur, tandis que les plus fines particules seront soumises à la diffusion. Cependant, lorsque les particules sont électriquement chargées, la force électrostatique est souvent prédominante et va influencer fortement leur comportement (Renoux et Boulaud, 1998).

En fait, les effets électriques sur l'évolution d'un aérosol sont divers. Citons par exemple, le transport des particules dans un champ électrique (McMurry et Rader 1985, Clement et Harrison 1996), leur dépôt par force image sur les surfaces, notamment dans les voies

respiratoires (Cohen *et al.*, 1996) ou encore, la modification du processus de coagulation dû aux attractions et aux répulsions électrostatiques (Clement *et al.*, 1995).

Pour réduire ces effets, on utilise généralement des sources radioactives scellées pour produire des petits ions positifs et négatifs qui peuvent diffuser sur les particules et ainsi "neutraliser" l'aérosol. Dans ce cas, son état électrique est couramment décrit par une distribution des charges électriques globalement neutre qui suit la loi de Boltzmann. Cependant, il existe plusieurs situations où la charge électrique globale de l'aérosol peut être très différente de zéro, même s'il est en présence d'ions bipolaires.

Dans le cas où le milieu est fortement ionisé, la différence entre les mobilités électriques des petits ions positifs et négatifs joue un rôle déterminant pour la détermination de la distribution des charges électriques de l'aérosol. En effet, les ions négatifs ont une mobilité plus importante que les positifs car ils sont généralement plus petits. En conséquence, la distribution des charges électriques de l'aérosol est globalement négative. Ce fait est rapporté par de nombreux auteurs (Gunn et Woesnner 1956, Bricard *et al.* 1965, Pourprix 1973). Plusieurs théories, bien établies, sont disponibles dans la littérature. Toutefois, il n'existe pas de validation complète de celles-ci, notamment lorsque le milieu est très fortement ionisé. Or une telle situation est à envisager dans l'industrie nucléaire, qu'il s'agisse du fonctionnement normal dans certain procédés ou dans l'hypothèse d'une situation accidentelle à l'intérieur d'une installation.

Pour les aérosols radioactifs, le processus de chargement électrique est plus complexe. Des petits ions bipolaires sont créés dans le milieu gazeux environnant par les rayonnements radioactifs, ce qui contribue à la neutralisation des particules, mais il existe également un auto-chargement électrique de ces particules lors de l'émission des électrons bêta ou des noyaux alpha. Par ailleurs, l'émission d'un noyau alpha hors de la particule arrache un grand nombre d'électrons périphériques. En conséquence, la distribution des charges électriques d'un aérosol radioactif peut être fortement décalée vers des valeurs positives (Yeh, 1976).

Comme nous pouvons le constater, la prise en compte de tous ces mécanismes est complexe. A l'heure actuelle, suite aux travaux de Clement et Harrison (1992), nous disposons d'une approche théorique relativement complète du processus de chargement électrique des aérosols radioactifs. A partir de leur théorie, ces auteurs ont montré que les propriétés électriques spécifiques des aérosols radioactifs peuvent considérablement influencer leur évolution dans une enceinte, et en conséquence les transferts de contamination. Citons par exemple, la coagulation de l'aérosol radioactif (Clement *et al.*, 1995) et donc sa sédimentation ou bien, dans certaines situations, le dépôt des particules sous l'action d'un champ électrostatique (Clement et Harrison, 2000).

En revanche, il n'existe pratiquement pas de données expérimentales sur la charge électrique des aérosols radioactifs. Néanmoins, les deux expériences de Yeh *et al.* (1976 et 1978) ont permis de mettre clairement en évidence l'auto-chargement de ces aérosols. Cependant leurs résultats expérimentaux ne permettent pas de valider de façon certaine le modèle établi par Clement et Harrison (1992).

Dans l'industrie nucléaire, les propriétés électriques de ces aérosols ne sont généralement pas prises en compte pour évaluer les transferts de contamination dans l'hypothèse d'une situation d'accident à l'intérieur d'une installation, notamment dans les études de sûreté des réacteurs nucléaires (Loyalka 1983, Clement et Harrison 1990). Par ailleurs, il existe des expériences à échelles réduites sur la caractérisation de la phase d'aérosols radioactifs issus des produits de fission relâchés lors d'une séquence accidentelle grave dans un réacteur nucléaire. Elles montrent que les dépôts d'aérosols radioactifs dans l'enceinte de confinement sont mal estimés par les modèles théoriques. A partir de ce constat, l'hypothèse d'effets électrostatiques importants liés à la charge électrique des aérosols radioactifs, est envisagée (Layly, 1998). Il existe donc, dans l'industrie nucléaire, un besoin d'une connaissance précise des propriétés électriques des aérosols radioactifs.

Toutes ces constatations sont à l'origine de notre travail. Il s'agit pour nous, d'une part, d'étudier expérimentalement les milieux fortement ionisés et l'état de charge électrique des aérosols dans une telle situation, d'autre part, d'étudier les propriétés électriques des aérosols radioactifs artificiels, notamment de façon expérimentale pour permettre de qualifier les modèles théoriques existants.

Pour cela, dans un premier chapitre, nous décrivons les différentes théories permettant de modéliser, d'une part, l'état de charge électrique des aérosols non radioactifs en présence d'ions bipolaires, d'autre part celui des aérosols radioactifs. Il s'agit également de comprendre et d'expliquer les écarts existant entre les résultats expérimentaux disponibles dans la littérature et les modèles théoriques. Enfin, nous recherchons les différents paramètres influents à étudier expérimentalement pour qualifier les différents modèles, dans le cas des aérosols non radioactifs en milieu fortement ionisé et dans le cas des aérosols radioactifs artificiels.

Ceci nous conduit alors, dans un deuxième chapitre, à étudier les propriétés des ions créés dans l'air sous l'action d'un rayonnement radioactif, notamment dans le cas d'une forte irradiation. Pour cela, nous réalisons un dispositif expérimental spécifique, et nous recherchons, puis étudions les différentes situations où ces propriétés varient et sont susceptibles d'entraîner une modification importante de l'état de charge électrique de l'aérosol.

Dans le troisième chapitre, nous réalisons un dispositif expérimental pour mesurer la charge électrique des aérosols. Nous couplons également celui-ci avec notre dispositif expérimental de mesure des ions. Le système ainsi réalisé permet de contrôler l'ensemble des paramètres agissant sur la charge électrique des aérosols. Nous adaptons ensuite notre système pour étudier la charge électrique des aérosols en milieu ionisé par une forte irradiation gamma.

Le quatrième chapitre décrit notre étude sur la charge électrique des aérosols radioactifs artificiels. Nous expliquons les contraintes expérimentales d'une telle étude, puis nous détaillons la conception et la réalisation de notre dispositif expérimental original, ainsi que le développement spécifique des techniques instrumentales mises en œuvre. Nous validons ensuite notre dispositif et nous réalisons son confinement en boîte à gants. Tout ceci nous permet d'étudier la charge électrique d'un aérosol radioactif de  $^{137}\text{Cs}$  émetteur bêta, et de comparer nos données expérimentales avec le modèle théorique de Clement et Harrison (1992).

# CHAPITRE I

## LES PROPRIETES ELECTRIQUES DES AEROSOLS

### I. Introduction

La charge électrique portée par les particules d'un aérosol est un paramètre important, car elle peut fortement influencer son évolution. En effet, les forces électrostatiques sont souvent largement supérieures aux autres forces exercées sur les particules. Or la plupart des aérosols d'origines naturelle ou artificielle sont électriquement chargés, les mécanismes de chargement étant très diversifiés. On peut citer, par exemple : la friction, la pulvérisation, la diffusion d'ions, l'émission thermo-ionique ou photoélectrique ou bien l'émission de fragments chargés dans le cas des aérosols radioactifs.

Nous étudierons particulièrement deux situations dans lesquelles la diffusion des petits ions positifs et négatifs conditionne la charge électrique des aérosols. Le premier cas concerne l'état de charge électrique des aérosols en milieu fortement ionisé, le deuxième, l'état de charge des aérosols radioactifs artificiels. Dans ces deux cas, les propriétés des petits ions présents dans le gaz vont jouer un rôle important, et leur étude est indissociable de celle des charges électriques portées par les particules d'aérosols. C'est pourquoi, nous consacrons également une partie de ce chapitre à l'étude des petits ions.

### II. La mobilité des particules

#### II.1. *La mobilité dynamique*

La mobilité dynamique des particules est un paramètre permettant de caractériser le mouvement d'un aérosol soumis à un champ de forces extérieures. Ce paramètre est utilisé lorsque la vitesse de la particule est proportionnelle à la force qui agit sur elle, suivant la relation :

$$\vec{V}_p = B \cdot \vec{F} , \quad (1.1)$$

où  $V_p$  représente la vitesse de la particule en  $m \cdot s^{-1}$ ,  $B$  la mobilité dynamique de la particule exprimée en  $m \cdot s^{-1} \cdot N^{-1}$  et  $F$  la force en  $N$ .

La mobilité dynamique est couramment utilisée pour caractériser la sédimentation d'un aérosol dans une enceinte. En effet, lorsque les particules sont soumises à la force de pesanteur, elles atteignent rapidement une vitesse limite de chute dans le gaz. Pour un nombre de Reynolds faible ( $Re < 1$ ), en utilisant la loi de Stokes, l'expression de la mobilité dynamique est la suivante :

$$B = \frac{C_u}{3\pi \cdot \mu_v \cdot D_p} , \text{ avec } C_u = 1 + Kn \cdot (1,142 + 0,558 \cdot \exp(-0,999/Kn)) , \quad (1.2)$$

où  $C_u$  représente le coefficient de correction de Cunningham,  $\mu_v$  la viscosité dynamique du fluide ( $\mu_v = 1,832 \times 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{s}$  pour l'air dans les conditions STP),  $D_p$  le diamètre de la particule (m) et  $Kn$  le nombre de Knudsen.

Le nombre de Knudsen est défini par le rapport entre le libre parcours moyen des molécules du gaz et le rayon des particules. Ce nombre permet de caractériser le régime continu ou moléculaire des interactions entre le gaz et les particules.

## II.2. La mobilité électrique

La mobilité électrique est utilisée pour caractériser le mouvement d'un ion ou d'une particule chargée dans un champ électrique. La vitesse de dérive de la particule dans le champ électrique est donnée par la relation :

$$\vec{V}_p = Z \cdot \vec{E} \text{ avec } Z = j \cdot e \cdot B , \text{ soit } Z = \frac{j \cdot e \cdot C_u}{3\pi \cdot \mu_v \cdot D_p} , \quad (1.3)$$

où  $V_p$  représente la vitesse de la particule ( $m \cdot s^{-1}$ ),  $Z$  sa mobilité électrique ( $m^2 \cdot V^{-1} \cdot s^{-1}$ ),  $E$  le champ électrique ( $V \cdot m^{-1}$ ),  $j$  le nombre de charges élémentaires portées par la particule et  $e$  la charge élémentaire ( $1,6 \times 10^{-19} \text{ C}$ ).

Généralement, nous l'avons dit, les forces d'origines électriques sont bien supérieures aux forces de pesanteur, de diffusion ou bien de thermophorèse. Le tableau 1.1 montre l'importance de la force électrique par rapport à la sédimentation d'un aérosol. Nous avons calculé pour chaque diamètre de particule, la vitesse limite de chute dans l'air ( $V_s$ ) ainsi que le nombre de charges électriques nécessaire pour obtenir la même vitesse dans un champ électrique égal à  $120 \text{ V m}^{-1}$ , puis dans un champ électrique égal à  $300 \text{ kV m}^{-1}$ . Dans ce calcul, la particule est supposée sphérique et de densité unité, les conditions de pression et de température sont standard (STP :  $P=1013 \text{ hPa}$ ,  $T=293,15^\circ\text{K}$ ). Les valeurs des champs électriques utilisées sont des moyennes respectives du champ électrique terrestre par beau temps au niveau du sol, ou du champ électrique de rupture rencontré pendant un orage (Chalmers, 1967).

Tableau 1.1 - Comparaison des effets dynamiques et électriques.

$D_p$ ( $\mu\text{m}$ )	$V_s$ ( $\text{m s}^{-1}$ )	$Z$ ( $\text{m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ )	Nombre de charges élémentaires (e)	
			$120 \text{ V m}^{-1}$	$300 \text{ kV m}^{-1}$
0,01	$3,78 \cdot 10^{-7}$	$9,43 \cdot 10^{-8}$	$3,3 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$
0,1	$8,71 \cdot 10^{-7}$	$2,71 \cdot 10^{-8}$	$2,7 \cdot 10^{-1}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$
0,5	$1,00 \cdot 10^{-5}$	$2,50 \cdot 10^{-9}$	33,3	$1,3 \cdot 10^{-2}$
1	$3,51 \cdot 10^{-5}$	$1,10 \cdot 10^{-9}$	267	$1,1 \cdot 10^{-1}$
2	$1,31 \cdot 10^{-4}$	$5,07 \cdot 10^{-10}$	$2,15 \cdot 10^3$	$8,6 \cdot 10^{-1}$
10	$0,31 \cdot 10^{-2}$	$9,57 \cdot 10^{-11}$	$2,67 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^2$

### III. Eléments théoriques sur les propriétés des ions

#### III.1. *La classification des ions*

Généralement, les ions sont classés dans plusieurs catégories suivant leur dimension. Ces différentes catégories sont également le reflet des différents modes de formation des ions dans l'atmosphère. Israël (1957) propose une classification détaillée des ions suivant leur mobilité électrique. Dans son ouvrage, l'auteur distingue les 5 catégories suivantes : les petits ions, les petits ions intermédiaires, les gros ions intermédiaires, les ions de Langevin et les



ultra gros ions. Cependant dans le cadre de notre étude et par analogie avec d'autres auteurs (Whitby et Liu, 1966), nous distinguerons seulement deux catégories d'ions : les petits ions et les particules chargées. Afin de marquer cette distinction, nous utiliserons par la suite la lettre  $\mu$  pour désigner la mobilité électrique des petits ions.

### III.1.1. Les petits ions

Les petits ions sont constitués par des molécules ou des agrégats moléculaires portant une seule charge et dont la mobilité électrique est supérieure à  $0,1 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Cette limite de mobilité correspond à un diamètre d'environ  $1,5 \times 10^{-9} \text{ m}$ . Ces petits ions sont également appelés petits ions primaires, car ils sont formés par excitation des molécules gazeuses (Bricard, 1977). Plusieurs auteurs ont étudié en détail les mécanismes de formation des petits ions positifs et négatifs (Loeb 1961, Mohnen 1974, Bricard *et al.* 1977).

Les ions positifs se forment lorsqu'un électron est arraché d'une molécule tandis que les ions négatifs résultent de la diffusion d'électrons libres sur des molécules neutres, qui ont des affinités électronégatives. La taille et la mobilité des ions peuvent évoluer en fonction des conditions environnantes (Juan, 1965), par exemple, la nature du gaz porteur, la présence de vapeur d'eau ou bien la présence d'impuretés gazeuses (Bricard *et al.*, 1972).

Il existe de nombreux travaux sur l'étude de la mobilité des petits ions dans l'air (Loeb 1961, Bricard *et al.* 1970, Krien 1974, Ungethüm 1974, Cabane *et al.* 1976). Mohnen en 1974 a synthétisé les différents résultats obtenus dans les études expérimentales disponibles dans la littérature à cette date. Ces études mettent en évidence une différence entre les propriétés des ions créés dans l'atmosphère sous l'action de la radioactivité naturelle et des rayonnements cosmiques, et celles des ions créés en laboratoire dans de l'air pur sous l'action d'un rayonnement ionisant. Dans le cas des petits ions créés dans l'atmosphère, la mobilité moyenne des ions positifs est  $\mu_+ = 1,14 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  et celle des ions négatifs est  $\mu_- = 1,25 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ , dans le cas des ions produits dans de l'air "pur" les mobilités moyennes sont respectivement  $\mu_+ = 1,33 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  pour les ions positifs et  $\mu_- = 1,84 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  pour les ions négatifs.

Le coefficient de diffusion d'un ion peut être déterminé à partir de sa mobilité électrique, en utilisant la relation d'Einstein :

$$D = \mu \cdot k \cdot T / j \cdot e , \quad (1.4)$$

où D représente le coefficient de diffusion ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ),  $\mu$  la mobilité électrique de l'ion ( $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ), T la température (K), k la constante de Boltzmann ( $k=1,38 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ ), j le nombre de charges élémentaires portées par l'ion et e la charge élémentaire.

### III.1.2. Les particules chargées

Si on se réfère à la classification d'Israël (1957), les gros ions ou les ions de Langevin sont en fait des particules chargées dont la mobilité est inférieure à  $0,001 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ . Ces particules chargées naissent de la collision entre les petits ions et les particules neutres présentes dans le gaz. Le domaine de mobilité intermédiaire comprend des ions dont la mobilité dépend de l'humidité (Chalmers, 1967), de la formation de clusters (Bricard, 1977) ou bien de l'agglomération avec d'autres molécules (Huertas 1972, Krien 1974).

## III.2. *Les méthodes de productions des petits ions*

### III.2.1. Les rayonnements ionisants

Dans l'air, la méthode la plus commune pour créer des petits ions positifs et négatifs est l'utilisation de sources radioactives. En effet, lors d'une désintégration  $\alpha$ ,  $\beta$  ou  $\gamma$  le transfert d'énergie du rayonnement dans le gaz, permet l'ionisation d'un nombre considérable de molécules. L'énergie absorbée pour créer une paire d'ions correspond au potentiel d'ionisation des molécules. Dans l'air, ce potentiel est environ  $w_i=35,5 \text{ eV}$  pour les émissions  $\alpha$  et  $w_i=34 \text{ eV}$  pour les émissions  $\beta$  (Knoll, 1989).

- Le rayonnement alpha

Les parcours des rayonnements alpha dans l'air sont très faibles (quelques centimètres), plusieurs relations donnent le parcours du rayonnement alpha en fonction de son énergie. Morgan et Turner (1967) proposent les relations suivantes pour les conditions standard de pression et de température :

$$\begin{aligned} R_{\alpha} &= 0,56 \cdot E_i \text{ pour } E_i < 4 \text{ Mev,} \\ R_{\alpha} &= 1,24 \cdot E_i - 2,62 \text{ pour } 4 < E_i < 8 \text{ Mev ,} \end{aligned} \quad (1.5)$$

où  $R_{\alpha}$  représente le parcours du noyau d'hélium dans l'air (cm) et  $E_i$  l'énergie du rayonnement (Mev).

On trouve également (Pannetier, 1982) la relation empirique suivante :

$$R_{\alpha} = 0,32 \cdot E_i^{3/2} . \quad (1.6)$$

La production des ions varie le long de la trajectoire des émissions  $\alpha$ . Cependant, nous pouvons estimer l'ionisation spécifique globale lors d'une désintégration en utilisant la relation suivante :

$$I = E_i / w_i , \quad (1.7)$$

où  $I$  représente le nombre de paires d'ions créées pendant une désintégration (p.i./dés),  $E_i$  l'énergie du rayonnement (eV) et  $w_i$  le potentiel d'ionisation de l'air pour les émetteurs  $\alpha$  ( $w_i=35,5$  eV).

- Le rayonnement bêta

Le processus d'ionisation de l'air par les émetteurs bêta est plus complexe que celui des émetteurs alpha. En effet, les émissions bêta ne sont pas mono-énergétiques, mais il existe un spectre d'énergie des émissions pour chaque radioélément. Le parcours des électrons bêta est également plus complexe que celui des alpha, l'électron étant dévié de sa trajectoire lors des chocs avec les molécules du gaz.

Le parcours du rayonnement bêta est caractérisé par le coefficient d'absorption linéaire  $\mu_a$  défini par :

$$\mu_a = 1,7 \cdot \rho_g \cdot E_{\max}^{-1,14} , \quad (1.8)$$

où  $\mu_a$  représente le coefficient d'absorption linéaire ( $m^{-1}$ ),  $\rho_g$  la masse volumique du gaz ( $kg\ m^{-3}$ ) et  $E_{\max}$  l'énergie maximale du rayonnement (Mev).

Le flux d'électrons à une distance  $x$  de la source est alors déterminé par la relation :

$$\varphi(x) = \varphi_0 \cdot \exp(-\mu_a \cdot x) , \quad (1.9)$$

où  $\varphi$  représente le flux d'électrons en un point ( $m^{-2} \cdot s^{-1}$ ),  $\varphi_0$  le flux à la source et  $x$  la distance entre le point et la source (m).

Il existe des relations empiriques permettant de déterminer le parcours maximal d'un rayonnement bêta. Nous citerons ici les expressions du parcours correspondant à une atténuation d'un facteur  $10^3$  du flux d'électrons, le parcours des électrons dans la matière étant exprimé en masse par unité de surface ( $kg\ m^{-2}$ ) (Pannetier, 1982) :

$$\begin{aligned} R_\beta &= 4 \cdot E_{\max}^{1,38} \quad \text{pour } E_{\max} < 0,8 \text{ Mev} , \\ R_\beta &= 5,4 \cdot E_{\max} - 1,6 \quad \text{pour } E_{\max} > 0,8 \text{ Mev} , \end{aligned} \quad (1.10)$$

où  $R_\beta$  représente le parcours de l'électron ( $kg\ m^{-2}$ ), défini par le produit de l'épaisseur du milieu par sa masse volumique et  $E_{\max}$  l'énergie maximale du rayonnement bêta (Mev).

Pendant le parcours d'un électron bêta dans un matériau, il peut céder son énergie par l'ionisation des molécules rencontrées ou bien par la création d'un rayonnement de freinage. Le transfert d'énergie par rayonnement de freinage entraîne la production de photons, ce phénomène étant négligeable pour des électrons de faibles énergies ( $E_i < 1$  Mev) ou pour les matériaux de faibles nombres atomiques (Kaplan, 1963).

Par ailleurs, comme le spectre d'énergie des émetteurs bêta est continu, nous devons utiliser une valeur moyenne de l'énergie des émissions bêta afin de pouvoir calculer le nombre moyen de paires d'ions créées à chaque désintégration (I). Si on néglige la perte d'énergie par rayonnement de freinage, l'énergie moyenne disponible  $E_i$  (eV) pour l'ionisation du matériau est définie par la relation (Morgan et Turner, 1967) :

$$E_i \cong \frac{1}{3} E_{\max} , \quad (1.11)$$

où  $E_{\max}$  représente l'énergie maximale du spectre d'émission du radioélément (eV).

Le nombre moyen de paires d'ions créées à chaque désintégration est donc :

$$I = E_i / w_i , \quad (1.12)$$

où  $w_i$  est le potentiel d'ionisation de l'air pour les émetteurs bêta ( $w_i=34$  eV).

#### • Le rayonnement gamma

Le processus d'ionisation de l'air par un rayonnement gamma est lui aussi complexe. En effet, le rayonnement gamma est indirectement ionisant : les photons incidents vont produire des électrons énergétiques capables d'ioniser le milieu. Il existe 3 principaux types d'interactions entre les photons incidents et la matière : l'effet photo-électrique, l'effet Compton et la création de paires. Selon l'énergie du rayonnement incident et le numéro atomique du matériau, un des trois effets peut prédominer les interactions.

Il est possible de définir de façon analogue aux émetteurs bêta un coefficient d'absorption linéaire ( $\mu_a$ ). Cependant, l'expression d'un tel coefficient est complexe car il faut tenir compte de l'importance relative des trois types d'interactions. De plus, le calcul analytique de la production d'ions dans le milieu nécessite la connaissance du spectre d'énergie des électrons qui sont émis lors des différentes interactions. Dans ces conditions, l'évaluation de la production d'ions dans un gaz sous l'action d'un rayonnement gamma est difficile, et nécessite l'utilisation d'un logiciel de calcul de débit de dose.

Des logiciels permettent généralement d'établir une configuration de l'irradiation, et de calculer la quantité d'énergie cédée dans le milieu par unité de masse, en fonction des caractéristiques de la source irradiante. Nous pouvons citer, par exemple, le logiciel "MicroShield" que nous utilisons pour le dimensionnement d'une partie de nos expériences (Negin et Worku, 1993).

L'unité de dose est le Gray (Gy) correspondant à des  $J \cdot kg^{-1}$ . Toutefois, afin de calculer le taux d'ionisation dans un gaz, il est plus commode d'utiliser une ancienne unité historique appelée Roentgen (R). Cette unité représente la quantité de charges électriques positives ou négatives produites par unité de masse ( $1 R = 2,58 \times 10^{-4} C \cdot kg^{-1}$ ) (Knoll, 1989).

La correspondance entre le Gray et le Roentgen, s'exprime à l'aide de la relation suivante :  $1 C \cdot kg^{-1} \Leftrightarrow 33,8 Gy$ . L'intensité d'ionisation dans l'air  $I_\gamma$  (p.i.  $m^{-3} s^{-1}$ ) en fonction du débit de dose  $Dd$  ( $Gy \cdot h^{-1}$ ) s'exprime donc à l'aide de la relation :

$$I_\gamma = \frac{\rho_g}{33,8 \cdot 1,6 \times 10^{-19} \cdot 3600} \cdot Dd ,$$

or  $\rho_g = 1,205 kg m^{-3}$  pour l'air dans les conditions STP d'où,

$$I_\gamma = 6,189 \times 10^{13} \cdot Dd . \tag{1.13}$$

### III.2.2. L'effet couronne

L'utilisation des rayonnements ionisants permet seulement la production d'ions bipolaires. En revanche, l'effet couronne permet d'obtenir des ions d'une seule polarité et en grande quantité (Whitby, 1961). Afin de produire un effet couronne, il faut établir un champ électrique non uniforme, par exemple entre une pointe et un plan. Lorsque le champ électrique dépasse une valeur critique, le comportement du gaz change : il devient relativement conducteur et il y a création de charges unipolaires. La quantité d'ions produits dépend de la géométrie des électrodes, du champ électrique et des caractéristiques du gaz.

Soulignons ici que l'utilisation de 2 systèmes à effets couronnes fonctionnant en courant continu, ou bien un système fonctionnant en courant alternatif, permettent de contrôler la production d'ions positifs et négatifs en quantités différentes. En revanche, l'utilisation des sources radioactives implique une production d'ions positifs et négatifs en quantités égales.

### III.2.3. Les autres moyens de production

Il est possible de produire des ions dans un gaz par effet photoélectrique en utilisant un rayonnement ultra violet. Celui-ci provoque l'excitation et l'émission d'électrons appartenant à des molécules gazeuses (Burtscher *et al.*, 1982). Il est également possible de produire des ions à l'aide de flammes. En effet, dans une combustion, des ions sont produits par réactions chimiques entre le carburant et l'oxygène au niveau de la flamme (Burtscher *et al.*, 1986).

### III.3. *L'évolution des ions dans le gaz*

Après leur création dans le gaz, les ions vont évoluer de différentes façons. La concentration des ions résulte de plusieurs processus physiques comme leur recombinaison, leur fixation sur l'aérosol ou bien leur diffusion sur des parois. De plus, la mobilité et donc la diffusion peut évoluer suivant "l'âge" des ions ou bien suivant les conditions de pression de température et d'humidité.

#### III.3.1. La recombinaison

Le processus de recombinaison des ions s'apparente à la coagulation d'un aérosol. Les petits ions de signes opposés peuvent se rencontrer sous l'action de la diffusion ou bien des attractions électrostatiques. Dès lors, leurs charges électriques se neutralisent et ils disparaissent en tant qu'ions. La variation des concentrations en ions positifs et négatifs due à la recombinaison est symétrique, puisque les ions se recombinent par paires. Ce processus est décrit par les relations :

$$\frac{d n_+}{d t} = -\alpha \cdot n_+ \cdot n_- , \quad \text{et} \quad \frac{d n_-}{d t} = -\alpha \cdot n_+ \cdot n_- , \quad (1.14)$$

où  $n_{\pm}$  représente les concentrations en ions positifs ou négatifs ( $\text{m}^{-3}$ ) et  $\alpha$  le coefficient de recombinaison ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ).

En présence d'un taux de production de paires d'ions  $q$  (p.i.  $\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ), si la recombinaison est le seul mécanisme à intervenir dans la disparition des ions, la concentration en ions positifs est égale à celle des négatifs, et atteint un équilibre déterminé par l'équation :

$$n_{\infty} = \sqrt{\frac{q}{\alpha}} , \quad (1.15)$$

où  $n_{\infty}$  représente la concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre ( $\text{m}^{-3}$ ). Cette concentration d'équilibre est atteinte pour un temps  $t \gg 1/\sqrt{\alpha \cdot q}$  (Williams et Loyalka, 1991).

Le calcul du coefficient de recombinaison et sa mesure ont été effectués par plusieurs auteurs (Loeb 1961, Bricard 1977). Dans l'air et à pression atmosphérique, ils ont mesuré des valeurs de  $\alpha$  comprises entre  $1,2 \times 10^{-12}$  et  $2,1 \times 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ . Malgré cette dispersion des résultats, la valeur  $\alpha = 1,6 \times 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  est couramment employée (Bricard et Pradel 1966, Chalmers 1967, Mayya et Holländer 1995).

### III.3.2. La fixation des petits ions sur les aérosols

Les petits ions peuvent se fixer sur les particules d'aérosols et ainsi les charger électriquement. Cette fixation peut être fonction de différents types d'interactions entre les ions et les particules : la diffusion brownienne, l'attraction électrostatique ou bien la force due à l'image électrique de l'ion.

Ces phénomènes sont décrits par un coefficient de fixation  $\beta$  ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ) des ions sur l'aérosol, défini par le rapport entre le flux d'ions sur la particule et la concentration ionique dans le milieu :



$$\beta = \varphi/n_{\infty} , \quad (1.16)$$

où  $\varphi$  représente le flux d'ions sur la surface d'une particule ( $s^{-1}$ ) et  $n_{\infty}$  la concentration d'équilibre en ions dans le milieu ( $m^{-3}$ ).

En présence d'un aérosol fortement concentré, la fixation des ions sur les particules peut devenir le mécanisme dominant leur disparition. Ce mécanisme intervient par exemple dans la détermination des concentrations des petits ions atmosphériques. Si on néglige la recombinaison des ions, la concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre s'exprime alors par :

$$n_{\infty} = \frac{q}{\beta \cdot C_t} , \quad (1.17)$$

où  $n_{\infty}$  représente la concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre ( $m^{-3}$ ),  $q$  le taux de production de paires d'ions (p.i.  $m^{-3} \cdot s^{-1}$ ) et  $C_t$  la concentration de l'aérosol ( $m^{-3}$ ).

Les méthodes de calcul du coefficient de fixation dépendent du rapport entre le libre parcours moyen des ions et la dimension de l'aérosol. Nous pouvons distinguer différents régimes à l'aide du nombre de Knudsen, défini par la relation :

$$K_n = \frac{\lambda_i}{r_p} , \quad (1.18)$$

où  $\lambda_i$  représente le libre parcours moyen des ions dans l'air (pour les petits ions atmosphériques,  $\lambda_i=1,3 \times 10^{-8}$  m d'après Israël, 1957) et  $r_p$  le rayon de la particule (m).

Ainsi, lorsque  $Kn > 0,25$  : le régime est dit continu et la particule est considérée comme immobile par rapport aux ions environnants. Dans ce cas, nous pouvons appliquer l'équation classique de la diffusion (loi de Fick).

Lorsque  $Kn \ll 1$  : le régime est moléculaire et la vitesse d'agitation thermique de la particule n'est plus négligeable devant celle des ions.

Entre ces deux valeurs de  $Kn$  on se trouve dans le régime intermédiaire.

Nous expliciterons par la suite le calcul du coefficient de fixation dans le régime continu, pour déterminer la distribution des charges électriques d'un aérosol en milieu bipolaire.

### III.3.3. La diffusion sur les parois

La diffusion des ions sur les parois d'une enceinte est un phénomène important, qui peut influencer leur évolution dans le milieu. Les effets de la diffusion sont souvent étudiés et utilisés en métrologie, que ce soit pour la conception de systèmes de mesures (batteries de diffusion) ou bien pour l'interprétation de résultats expérimentaux (Willeke et Baron, 1993).

Il faut distinguer deux types de diffusion : la diffusion turbulente qui caractérise le transfert global d'une quantité vers les parois (l'intensité de cette diffusion va dépendre des écoulements aérauliques dans l'enceinte), et la diffusion moléculaire (mouvement brownien). Plusieurs auteurs (Billard *et al.* 1965, Porstendörfer et Mercer 1979) montrent que la diffusion moléculaire des ions sur les parois peut jouer un rôle important dans la réalisation et dans l'interprétation d'études expérimentales.

### III.3.4. Le vieillissement des ions

Plusieurs études montrent que le spectre de mobilité des petits ions dans l'air peut varier en fonction de leur "âge". En effet, Bricard *et al.* (1970) constatent une telle variation, ils supposent alors que les ions ne sont pas à l'équilibre thermodynamique au moment de leur création, et qu'ils peuvent grossir par condensation de vapeur pour atteindre cet équilibre. Par la suite, Cabane *et al.* (1976) montrent qu'il faut également tenir compte de la présence d'impuretés gazeuses pour décrire le spectre de mobilité des ions.

Il existe également de nombreuses études sur l'évolution de la mobilité des petits ions atmosphériques (Loeb 1961, Mohnen 1974, Ungethüm 1974), ces études montrent que la fixation de molécules gazeuses ainsi que des réactions chimiques entraînent un grossissement des ions atmosphériques.

### III.3.5. La durée de vie des ions

A partir de leur création, la durée de vie des ions dépend principalement, du mécanisme qui domine leur évolution. Par exemple, lorsque la concentration en ions est élevée, leur recombinaison est le mécanisme déterminant l'évolution de leur concentration. La constante de temps permettant de caractériser le processus de recombinaison s'exprime par (Reed *et al.*, 1977) :

$$\tau_r \cong 1/\alpha \cdot n , \quad (1.19)$$

où  $\tau_r$  représente la constante de temps pour la recombinaison (s),  $\alpha$  le coefficient de recombinaison des petits ions ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ) et  $n$  la concentration en ions positifs ou négatifs dans le milieu ( $\text{m}^{-3}$ ).

En revanche, lorsque la fixation des petits ions sur l'aérosol est prépondérante sur leur recombinaison, la constante de temps du processus est déterminée par la relation (Williams et Loyalka, 1991) :

$$\tau_f = \varepsilon_0/4\pi \cdot e \cdot (\mu_+ \cdot n_+ + \mu_- \cdot n_-) \cong k \cdot T \cdot \varepsilon_0/4\pi e^2 \cdot D \cdot n_t , \quad (1.20)$$

où  $\tau_f$  représente la constante de temps caractéristique de la fixation des petits ions sur un aérosol (s),  $\mu_+$  et  $\mu_-$  représentent respectivement les mobilités électriques des petits ions positifs et négatifs ( $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ),  $n_+$  et  $n_-$  les concentrations respectives en ions positifs et négatifs ( $\text{m}^{-3}$ ),  $D$  le coefficient de diffusion des ions ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ) et  $n_t$  leur concentration totale ( $\text{m}^{-3}$ ).

Dans le cas de la diffusion sur les parois, la constante de temps du processus est déterminée par :

$$\tau_D = S/D , \quad (1.21)$$

où  $\tau_D$  représente la constante de temps de la diffusion sur les parois (s),  $S$  la surface de la paroi ( $\text{m}^2$ ) et  $D$  le coefficient de diffusion des ions ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ).

Dans l'atmosphère, la durée de vie moyenne d'un petit ion varie en fonction de la pollution, donc en fonction de la concentration de l'aérosol. Cette durée de vie peut ainsi varier entre 10 s (forte pollution) et 10 min (faible pollution) (Renoux et Boulaud, 1998).

#### **IV. La métrologie des petits ions dans un gaz**

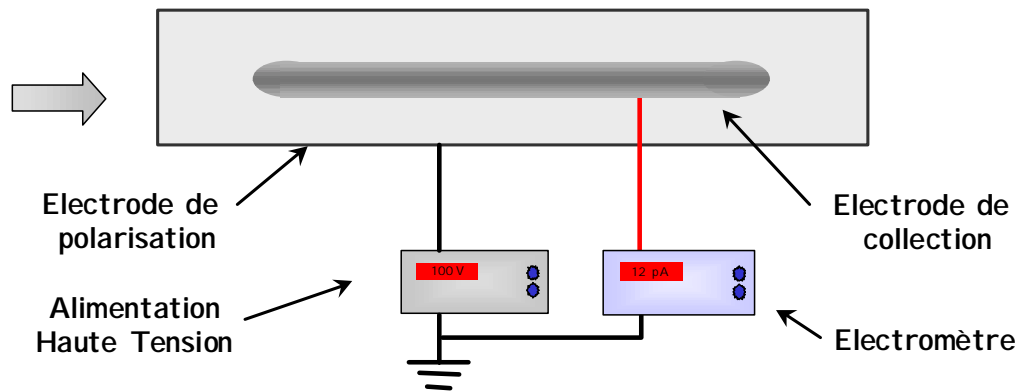
Dans le paragraphe précédent, nous avons abordé les différentes lois permettant de déterminer le comportement des ions dans un milieu. Afin de proposer des validations expérimentales des différentes théories existantes, de nombreuses équipes de recherche ont conçu et développé des techniques de mesures.

Les principaux paramètres nécessaires à l'étude des ions sont la concentration, la conductibilité électrique et la mobilité électrique. Passons rapidement en revue les différentes techniques de mesure que nous aurons l'occasion d'utiliser dans notre travail.

##### *IV.1. La mesure de la concentration*

Le principe de la mesure de la concentration en ions dans un milieu repose sur leur collection par une électrode et la détermination du courant résultant (fig. 1.1). Pour cela, on utilise généralement un condensateur plan ou cylindrique dans lequel circule le gaz (Tammet, 1967). Lorsqu'on applique une tension entre les électrodes, les ions bipolaires vont être collectés distinctement par les deux électrodes. Pour un débit et une tension fixés dans le condensateur, il est possible de définir une mobilité critique telle que tous les ions ayant une mobilité supérieure à celle-ci seront collectés. Dans le cas de la mesure des petits ions, la mobilité critique doit donc correspondre à la limite inférieure du domaine de mobilité.

Un électromètre est utilisé pour mesurer le courant reçu par l'électrode de collection. Nous pouvons ainsi, suivant la polarisation du condensateur, mesurer soit la concentration en ions positifs soit celle en ions négatifs.



**Figure 1.1** - Schéma de principe d'un compteur d'ions cylindrique à électrode de collection interne.

Pour un condensateur cylindrique, appelé aussi tube de Zeleny (Renoux, 1961), la mobilité critique  $\mu_c$  ( $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ) des ions collectés est définie par la relation (Israël 1961, Tammet 1967) :

$$\mu_c = \frac{\epsilon_0 \cdot Q_v}{c \cdot U} , \quad (1.22)$$

où  $Q_v$  représente le débit d'air dans le condensateur ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ),  $c$  la capacité du condensateur (F),  $\epsilon_0$  la permittivité du vide ( $8,85 \times 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$ ) et  $U$  la tension entre les électrodes (V).

Supposons qu'il n'y a que des petits ions dans le milieu, et que la tension est suffisante pour tous les capter, le courant reçu par l'électrode collectrice s'exprime alors par :

$$i_{\pm} = e \cdot n_{\pm} \cdot Q_v , \quad (1.23)$$

où  $i_{\pm}$  représente le courant (A),  $e$  la charge élémentaire (C),  $n_{\pm}$  la concentration des ions positifs ou négatifs ( $\text{m}^{-3}$ ) et  $Q_v$  le débit d'air dans le condensateur ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ).

Les compteurs d'ions à géométrie cylindrique sont généralement les plus fréquemment utilisés. Cependant, certains auteurs (Hoppel et Frick, 1990b) utilisent une géométrie plane mieux adaptée à leur condition d'utilisation.

## IV.2. La mesure de la conductibilité électrique du milieu

La conductibilité électrique permet de déterminer le courant circulant dans le gaz sous l'action d'un champ électrique. S'il existe plusieurs catégories d'ions de mobilités  $\mu_i$  et de concentrations respectives  $n_i$ , la conductibilité totale du gaz ( $\gamma$ ) s'écrit :

$$\gamma = \gamma_+ + \gamma_- , \text{ avec } \gamma_+ = e \cdot \sum_i \mu_{+,i} \cdot n_{+,i} \text{ et } \gamma_- = e \cdot \sum_i \mu_{-,i} \cdot n_{-,i} , \quad (1.24)$$

où  $\gamma_{\pm}$  représente la conductibilité unipolaire des ions positifs ou négatifs ( $\Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$ ),  $\mu_{\pm,i}$  les mobilités des ions positifs ou négatifs de la catégorie  $i$  ( $\text{m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) et  $n_{\pm,i}$  les concentrations respectives des ions positifs ou négatifs ( $\text{m}^{-3}$ ).

Le flux d'ions en mouvement dans un champ électrique s'exprime alors par :

$$\vec{\phi}_{s\pm} = \frac{\gamma_{\pm}}{e} \cdot \vec{E} , \quad (1.25)$$

où  $\vec{\phi}_{s\pm}$  représente le flux surfacique d'ions positifs ou négatifs ( $\text{m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) et  $\vec{E}$  le champ électrique ( $\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$ ).

La conductibilité électrique de l'air est un paramètre important de l'électricité atmosphérique. Elle permet de déterminer les courants électriques circulant dans l'atmosphère (Bering *et al.*, 1998) et c'est également un indicateur de la pollution atmosphérique (Phillips *et al.* 1955, Paugam 1978, Aplin *et al.* 1998). La conductibilité électrique de l'air est également importante en métrologie des aérosols. En effet, Gunn (1954) montre analytiquement que la charge électrique moyenne d'un aérosol en milieu bipolaire, dépend du rapport entre les conductibilités électriques des ions positifs et négatifs.

- Principe de la mesure

La méthode classique de mesure de la conductibilité électrique utilise un condensateur cylindrique analogue aux compteurs d'ions. La méthode date de 1905 et elle a été établie par Gardien. De nombreux auteurs et utilisateurs détaillent le principe de la méthode (Israël 1961, Paugam 1978) ainsi que les différentes causes de déviations des conditions idéales de fonctionnement (Tammet, 1967). Cette méthode consiste à aspirer les ions à travers un

condensateur cylindrique avec un débit déterminé, et à mesurer le courant reçu par une des électrodes lorsque qu'on applique entre elles une différence de potentiel. Supposons que les ions présents dans le milieu ont un spectre de mobilités comprises entre 0 et l'infini. Le courant mesuré sur l'électrode collectrice en fonction de la tension entre les bornes du condensateur s'exprime alors (Tammet, 1967) :

$$i = \frac{c \cdot U}{\epsilon_0} \cdot \gamma(0, \mu_c) + Q_v \cdot \rho(\mu_c, \infty) , \quad (1.26)$$

où  $i$  représente le courant d'ions arrivant sur l'électrode de mesure (A),  $\mu_c$  la mobilité critique du système correspondant à la tension  $U$  ( $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ),  $\gamma(0, \mu_c)$  la conductibilité électrique due aux ions de mobilités comprises entre 0 et  $\mu_c$  ( $\Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ) et  $\rho(\mu_c, \infty)$  la densité de charges due aux ions de mobilités supérieures à  $\mu_c$  ( $\text{C m}^{-3}$ ).

Si nous faisons maintenant l'hypothèse qu'il existe une seule catégorie d'ions de mobilité  $\mu$  dans le milieu, nous obtenons lorsque  $\mu < \mu_c$ , un courant directement proportionnel à la tension du condensateur, puisque  $\rho(\mu_c, \infty) = 0$ . Réciproquement, lorsque  $\mu > \mu_c$  nous obtenons  $\gamma(0, \mu_c) = 0$  et le courant mesuré est constant, il correspond à la collection de tous les ions dans le condensateur.

Nous représentons sur la figure 1.2 la caractéristique courant-tension idéale, obtenue pour une seule catégorie d'ions unipolaires et de mobilité  $\mu$ .

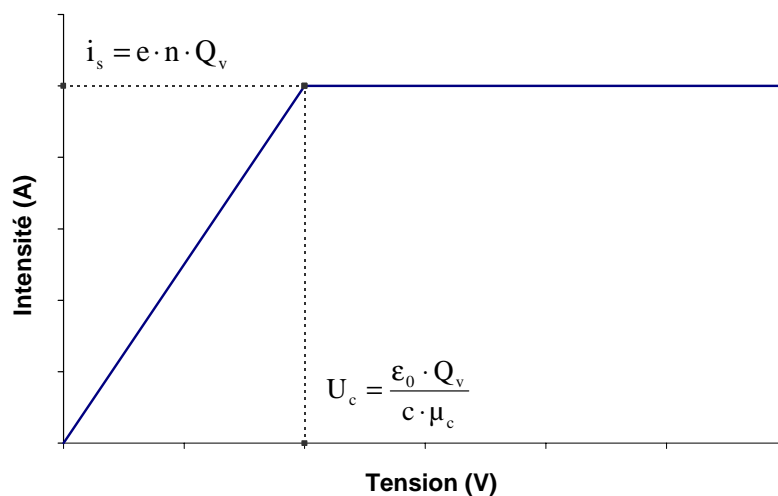


Figure 1.2 - Mesure idéale de la conductibilité électrique.

La conductibilité due aux ions de même signe s'exprime alors par la relation :

$$\gamma_{\pm} = \frac{\epsilon_0 \cdot i}{c \cdot U} . \quad (1.27)$$

La conductibilité électrique des ions positifs est obtenue en appliquant une tension positive sur l'électrode opposée à l'électrode de mesure, la mesure des ions négatifs est obtenue avec une polarité négative.

Signalons que cette méthode permet également d'obtenir la mobilité électrique des ions bipolaires, à condition d'avoir une catégorie prédominante d'ions de chaque signes.

### IV.3. *Mesure de la mobilité électrique des petits ions*

Nous avons vu que la mobilité électrique des petits ions est un paramètre important, permettant, par exemple, de calculer leur coefficient de diffusion ou de calculer leur fixation sur les particules d'aérosols. Les petits ions et leurs mobilités électriques sont particulièrement étudiés pour la compréhension des processus de nucléation ou des réactions chimiques en phase gazeuse (Raes *et al.*, 1986). En effet, les petits ions de l'atmosphère peuvent jouer un rôle important dans la production d'aérosols par conversion gaz-particule ainsi que dans la formation de noyaux de condensation (Bricard et Pradel 1966, Harrison 1998, Juozaitis et Butkus 1999).

- Principe de la mesure

Il existe plusieurs techniques de mesures de la mobilité des petits ions suivant la précision qu'on désire obtenir. Ces techniques sont toujours en développement afin de répondre aux nouveaux besoins expérimentaux, notamment pour l'étude de la composition chimique des ions et de la corrélation entre leur masse et leur mobilité.

Une première méthode de mesure de la mobilité des petits ions met en œuvre un condensateur cylindrique et la méthode de Gerdien, décrite dans le paragraphe précédent. Tammet (1967) indique les différentes façons d'opérer ainsi que les avantages et inconvénients des divers dispositifs expérimentaux. Renoux (1961) a utilisé un condensateur cylindrique (ou tube de Zélény) pour étudier la mobilité des petits ions radioactifs dans l'air.



La méthode consiste à collecter les ions de différentes mobilités sur l'électrode centrale du tube, l'abscisse de captation étant fonction de la mobilité de l'ion. L'analyse s'effectue ensuite par une technique de comptage radioactif (scintillateur et photomultiplicateur).

Une autre méthode consiste à mesurer le temps de vol ( $\Delta t$ ) des ions dans un espace délimité où il existe un champ électrique. La mobilité est reliée à la distance parcourue ( $l$ ) et au champ électrique ( $E$ ) par l'expression :  $\mu = l/\Delta t \cdot E$ . Cette technique permet également de contrôler le temps de vieillissement des ions artificiellement créés. On trouvera le détail de la méthode et de l'appareillage dans l'étude de Cabane (1973). Par ailleurs, des techniques plus récentes ont été développées pour étudier la nucléation dans l'air (Emi *et al.*, 1998).

#### • Résultats expérimentaux

Il existe dans la littérature plusieurs synthèses des travaux effectués sur la mesure de la mobilité des ions dans l'air, nous citerons par exemple les synthèses de Mohnen (1974) et de Ungethüm (1974). Dans le cas des petits ions atmosphériques les mobilités obtenues pour les ions positifs varient entre 1,03 et  $1,13 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ , et pour les ions négatifs les mesures varient entre 1,08 et  $1,28 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Dans le cas des petits ions créés dans de l'air pur en laboratoire, les mobilités positives sont comprises entre 1,23 et  $1,40 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ , et entre 1,73 et  $2,0 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  pour les ions négatifs.

La mobilité des ions produits sous atmosphère contrôlée est également très étudiée. En effet, de nouveaux moyens de mesures de la mobilité sont développés pour étudier l'influence des ions sur les réactions de conversion gaz-particule ainsi que sur la formation de noyaux de condensation (Harrison, 1998). Ces études permettent d'établir et de valider des théories d'une part sur la corrélation entre la mobilité et la masse, d'autre part, entre la mobilité et la composition des petits ions (Mohnen 1974, Cabane *et al.* 1976, Tammet 1995).

#### IV.4. Conclusion

Nous avons vu qu'il existe beaucoup d'études sur les petits ions, que ce soit sur les ions atmosphériques, ou sur ceux créés artificiellement et utilisés en métrologie des aérosols. Nous remarquons de plus, qu'il existe une assez grande variabilité des résultats, donc des caractéristiques des petits ions. Cette variabilité provient des divers mécanismes complexes,

intervenant dans la création et dans l'évolution des ions, ces mécanismes étant sensibles aux conditions environnementales.

En revanche, nous avons trouvé très peu d'études expérimentales où les propriétés des ions sont étudiées conjointement avec la charge électrique des aérosols. Pourtant, les études théoriques montrent que la charge électrique d'un aérosol est sensible aux propriétés des ions présents dans le milieu. Nous verrons effectivement, que cette sensibilité peut être importante lors de la métrologie fine de la charge électrique d'un aérosol.

## **V. Théorie de la charge électrique des aérosols non radioactifs par diffusion d'ions bipolaires**

### *V.1. Le coefficient de fixation ion - aérosol*

Nous avons vu dans la partie précédente que la fixation des ions sur les aérosols peut être un mécanisme important vis à vis de leur disparition. C'est également ce mécanisme qui détermine l'état de charge électrique des aérosols en milieu bipolaire. Nous nous intéressons ici surtout au cas du régime continu pour lequel le mouvement Brownien des particules est négligeable devant la vitesse d'agitation thermique des ions.

#### V.1.1. Calcul du coefficient de fixation en régime continu

Lorsque le régime est continu ( $Kn < 0,25$ ), nous pouvons utiliser l'équation classique de la diffusion. Il est alors possible de calculer le coefficient de fixation des petits ions sur les particules en fonction de leur coefficient de diffusion et du rayon des particules supposées sphériques. Le calcul du flux d'ions sur une sphère électriquement neutre de rayon  $r_p$ , permet d'exprimer le coefficient de fixation par la relation (Bricard, 1962) :

$$\beta_{\pm} = 4 \cdot \pi \cdot D_{\pm} \cdot r_p , \quad (1.28)$$

où  $\beta_{\pm}$  représente le coefficient de fixation des petits ions positifs ou négatifs ( $m^3 s^{-1}$ ) sur une particule neutre,  $D_{\pm}$  le coefficient de diffusion des ions positifs ou négatifs ( $m^2 s^{-1}$ ) et  $r_p$  le rayon de la particule d'aérosol (m).

Lorsque la particule est conductrice et électriquement chargée, il faut alors tenir compte de l'image électrique de l'ion et de l'action du champ électrostatique. Si nous supposons que la particule est sphérique, de rayon ( $r_p$ ) supérieur au libre parcours moyen des ions dans l'air, plusieurs auteurs (Bricard 1962, Fuchs 1963, Mohnen 1967) ont montré qu'on peut écrire les coefficients de fixation sous la forme :

$$\beta_{1j} = \frac{4\pi \cdot D_+ \cdot r_p}{\zeta(D_+, r_p, j)} \quad \text{et} \quad \beta_{-1j} = \frac{4\pi \cdot D_- \cdot r_p}{\zeta(D_-, r_p, j)}, \quad (1.29)$$

où  $\beta_{1j}$  et  $\beta_{-1j}$  représentent respectivement le coefficient de fixation ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ) d'un ion positif sur une particule portant  $j$  charges élémentaires positives ou négatives et le coefficient de fixation d'un ion négatif sur une particule portant  $j$  charges,  $D_+$  et  $D_-$  représentent respectivement les coefficients de diffusion des ions positifs et négatifs ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ) et  $r_p$  le rayon des particules (m).  $\zeta(D, r_p, j)$  est une intégrale qu'on peut calculer graphiquement ou numériquement, elle exprime l'effet de la force Coulombienne et de la force image sur les flux d'ions à la surface d'une particule.

Lorsque l'action de l'image électrique est négligeable, Gunn (1954) établit une expression analytique des coefficients de fixation qui est fonction des coefficients de diffusion. Toutefois, les formules couramment utilisées sont exprimées en fonction des mobilités électriques des ions positifs et négatifs (Clement et Harrison, 1992) et sont définies par les relations :

$$\beta_{1j} = \frac{j \cdot e \cdot \mu_+}{\varepsilon_0 \cdot [\exp(2\lambda \cdot j) - 1]} \quad \text{et} \quad \beta_{-1j} = \frac{j \cdot e \cdot \mu_-}{\varepsilon_0 \cdot [1 - \exp(-2\lambda \cdot j)]}, \quad (1.30)$$

$$\text{avec} \quad \lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \varepsilon_0 \cdot r_p \cdot k \cdot T}, \quad (1.31)$$

où  $\mu_+$  et  $\mu_-$  représentent respectivement les mobilités électriques des petits ions positifs et négatifs ( $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ),  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide ( $\varepsilon_0 = 8,85 \times 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$ ) et  $\lambda$  un paramètre adimensionnel de l'aérosol correspondant au rapport entre l'énergie électrostatique de la particule et le facteur d'énergie de Boltzmann ( $k \cdot T$ ).

Les expressions précédentes sont valables seulement dans le régime continu, c'est à dire pour des particules de diamètres supérieurs à 0,1  $\mu\text{m}$  (Gunn, 1954). Pour des diamètres inférieurs, nous ne pouvons pas utiliser la théorie de la diffusion en milieu continu.

#### V.1.2. Calcul du coefficient de fixation en régime intermédiaire et moléculaire

Lorsque le nombre de Knudsen augmente, on passe successivement dans le régime intermédiaire puis dans le régime moléculaire. Dans ces cas, plusieurs auteurs montrent que la fraction chargée des particules ultra-fines est sous-estimée lorsqu'on utilise la théorie du régime continu ou bien la répartition statistique de Boltzmann (Flanagan et O'Connor 1961, Pollak et Metnieks 1962).

Dans le régime moléculaire, le coefficient de fixation s'exprime en fonction de la vitesse moyenne d'agitation thermique des ions et de leur répartition statistique au voisinage de la particule. Plusieurs théories et validations expérimentales sont disponibles dans la littérature. Nous pouvons citer, les travaux théoriques de Bricard (1962), de Fuchs (1963), ou bien de Gentry et Brock (1967). Les différentes théories se distinguent les unes des autres par les approximations effectuées. Par exemple, Gentry et Brock négligent l'action de l'image électrique dans leur calcul, tandis que Fuchs en tient compte au voisinage de la particule.

De nombreux travaux expérimentaux existent, et sont toujours en développement conjointement avec les nouvelles techniques de métrologie des aérosols. Nous pouvons citer, par exemple, les premiers travaux de Nolan et Kennan (1949) et ceux de Kojima et Sekikawa (1973) sur la mesure de la fraction chargée des particules en fonction de leurs diamètres. Plus récemment, Hussin *et al.* (1983), Kousaka *et al.* (1983) ainsi que Adachi *et al.* (1985) ont montré que le rapport entre les fractions chargées positivement et négativement dépend des propriétés des ions bipolaires. Toutefois, les auteurs indiquent que la théorie de Fuchs décrit correctement les résultats expérimentaux si on tient compte des différences de propriétés entre les ions positifs et négatifs. Nous pouvons également citer les travaux de Liu et Pui (1974a) sur l'efficacité de la neutralisation électrique d'un aérosol dans les régimes continu et moléculaire.

Pour déterminer le coefficient de fixation dans le régime intermédiaire, il est nécessaire de coupler les deux approches (continue et moléculaire). La méthode consiste à décomposer l'espace environnant la particule en 2 zones. La limite entre ces 2 zones, communément appelée sphère limite (Bricard 1962, Fuchs 1963 et 1964), correspond à la distance entre la surface de la particule et le lieu de la dernière collision entre un ion et une molécule gazeuse. A l'extérieur de la sphère limite le flux d'ions s'exprime de façon classique, à l'aide de la diffusion et des forces électrostatiques. En revanche, l'intérieur de la sphère limite étant considéré comme un espace vide, on suppose que les ions ne subissent plus de collisions avec les molécules du gaz.

Bricard (1962) a calculé les coefficients de fixation en supposant que le trajet des ions est rectiligne à l'intérieur de la sphère limite, tandis que Fuchs (1963) a pris en compte la courbure de la trajectoire de l'ion due à la force image. Tymen et Renoux (1977) ont effectué des calculs numériques de ces coefficients afin de comparer les différentes approches. Leurs résultats montrent que les différences entre les théories sont sensibles seulement pour des particules dont le rayon est inférieur à 0,01  $\mu\text{m}$ .

Plus récemment, Hoppel et Frick (1986, 1990a) ont introduit un processus de capture par rencontre avec un troisième corps ("three-body trapping") dans le calcul des coefficients de fixation, leurs calculs tenant compte également de la force image. Cependant, ces auteurs soulignent le fait qu'il existe peu de résultats expérimentaux où la métrologie est suffisamment précise pour permettre la validation des différentes théories (Flanagan 1966, Fjeld et McFarland 1986, Pui *et al.* 1988).

Nous résumons dans le tableau 1.2 les différentes théories les plus utilisées dans chacun des régimes, ainsi que les approximations effectuées.

Tableau 1.2 - Synthèse des différentes théories sur les coefficients de fixation.

<b>Régime continu <math>Kn \ll 1</math></b>	
Gunn (1954)	Calcul analytique en négligeant l'image électrique.
Bricard (1962)	Calcul de $\zeta(D, r_p, j)$ incluant l'image électrique.
<b>Régime intermédiaire <math>Kn \approx 1</math></b>	
Bricard (1962)	Sphère limite, trajectoire interne rectiligne (néglige l'image électrique).
Fuchs (1963)	Sphère limite, trajectoire interne courbe (image électrique).
<b>Régime moléculaire <math>Kn \gg 1</math></b>	
Gentry et Brock (1967)	Collisions ions-particules par agitation thermique (négligent l'image électrique).
Fuchs (1963)	Image électrique.
Hoppel et Frick (1986)	Image électrique et capture par 3° corps

### V.2. Les équations d'évolution de la charge électrique d'un aérosol

Il existe plusieurs façons de décrire l'évolution de la charge électrique d'un aérosol lorsqu'il est en présence d'ions bipolaires. Nous pouvons considérer, en première approximation, que toutes les particules portent le même nombre moyen de charges électriques ( $J$ ), et calculer les flux d'ions positifs et négatifs sur ces particules. Cette approche peut être affinée en tenant compte de l'évolution des concentrations en ions positifs et négatifs dans le milieu. Une deuxième approche, plus réaliste, consiste à décrire de façon individuelle l'évolution des fractions de particules portant un nombre donné ( $j$ ) de charges élémentaires. Nous obtenons alors un système d'équations d'autant plus important que le nombre maximum de charges rencontré est grand.

### V.2.1. Evolution de la charge moyenne de l'aérosol

Liu et Pui (1974a) ont modélisé de façon simple l'évolution de la charge électrique d'un aérosol en milieu bipolaire. Afin d'étudier la cinétique du processus de neutralisation d'un aérosol, ils utilisent la relation :

$$\frac{dJ}{dt} = \phi_+ - \phi_- , \quad (1.32)$$

où J représente le nombre moyen de charges élémentaires des particules,  $\phi_+$  et  $\phi_-$  les flux d'ions respectivement positifs et négatifs sur la surface des particules (nombre de charges par seconde) et t le temps (s).

Si nous supposons que les ions positifs et négatifs ont la même mobilité ( $\mu_+ = \mu_- = \mu$ ) et la même concentration ( $n_+ = n_- = n$ ), nous obtenons, dans le régime continu, en utilisant les relations 1.16 et 1.30 (Liu et Pui, 1974a) :

$$\frac{dJ}{dt} = -\frac{4\pi e}{\epsilon_0} \cdot \mu \cdot n \cdot J , \quad (1.33)$$

où e représente la charge élémentaire,  $\mu$  la mobilité électrique des ions ( $m^2 V^{-1} s^{-1}$ ) et n la concentration des ions de chaque polarité ( $m^{-3}$ ).

Cependant, dès 1954, Gunn propose déjà une modélisation plus générale de l'évolution de la charge moyenne d'un aérosol monodispersé. En effet, son modèle prend en compte une asymétrie entre les mobilités et les concentrations des petits ions positifs et négatifs. L'auteur exprime ainsi l'évolution du nombre moyen de charges électriques en fonction des coefficients de fixation et obtient donc la relation suivante :

$$\frac{dJ}{dt} = \beta_{1J} \cdot n_+ - \beta_{-1J} \cdot n_- , \quad (1.34)$$

où  $\beta_{1J}$  et  $\beta_{-1J}$  représentent respectivement les coefficients de fixation des petits ions positifs et négatifs sur des particules portant un nombre de charge moyen J ( $m^3 s^{-1}$ ) et  $n_+$  puis  $n_-$  les concentrations respectives des ions positifs et négatifs ( $m^{-3}$ ).

Signalons que la charge électrique moyenne ( $\bar{J}$ ) de l'aérosol s'écrit :  $\bar{J} = J \times e$ .

## V.2.2. Equation générale de l'évolution de la distribution des charges électriques d'un aérosol

Bricard *et al.* (1965) ont proposé un système d'équations permettant de modéliser l'évolution de la distribution des charges d'un aérosol monodispersé. Ce système prend en compte l'évolution de la charge d'une particule en fonction de l'évolution de la charge des autres particules constituant l'aérosol.

L'équation 1.35 détermine alors l'évolution de la concentration des particules portant  $j$  charges élémentaires (positives ou négatives) en fonction de la concentration des particules portant  $j-1$  et  $j+1$  charges.

$$\frac{dC_j}{dt} = \beta_{1j-1} \cdot n_+ \cdot C_{j-1} + \beta_{-1j+1} \cdot n_- \cdot C_{j+1} - \beta_{1j} \cdot n_+ \cdot C_j - \beta_{-1j} \cdot n_- \cdot C_j, \quad (1.35)$$

où  $C_j$  représente la concentration de particules portant  $j$  charges élémentaires ( $m^{-3}$ ),  $\beta_{1j-1}$  le coefficient de fixation d'un ion positif sur une particule portant  $j-1$  charges ( $m^3 s^{-1}$ ),  $\beta_{-1j+1}$  le coefficient de fixation d'un ion négatif sur une particule portant  $j+1$  charges ( $m^3 s^{-1}$ ) et  $n_+$  puis  $n_-$  les concentrations respectives des ions positifs et négatifs ( $m^{-3}$ ).

Les deux premiers termes de l'équation correspondent à la source des particules portant  $j$  charges par fixation de petits ions positifs ou négatifs, respectivement sur des particules portant  $j-1$  et  $j+1$  charges. Les deux derniers termes de l'équation décrivent la disparition des particules portant  $j$  charges par fixation d'un ion positif ou négatif.

Lorsque  $j$  varie entre  $-\infty$  et  $+\infty$ , le système d'équations ( $dC_j/dt$ ) obtenu permet de décrire complètement l'évolution de la distribution des charges d'un aérosol monodispersé.

En fait, la modélisation correcte des flux d'ions positifs et négatifs sur les particules nécessite de coupler le système d'équations précédent avec l'évolution des concentrations en ions positifs et négatifs dans le milieu. Si nous supposons qu'il existe un terme source pour les ions égal à  $q$ , et que la disparition des ions est seulement due à leur recombinaison ou à la fixation sur l'aérosol, les équations d'évolution des concentrations en ions positifs et négatifs dans le milieu sont alors (Bricard *et al.*, 1965) :



$$\frac{dn_+}{dt} = q - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- - \sum_{j=-\infty}^{+\infty} \beta_{1j} \cdot n_+ \cdot C_j , \quad (1.36)$$

$$\frac{dn_-}{dt} = q - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- - \sum_{j=-\infty}^{+\infty} \beta_{-1j} \cdot n_- \cdot C_j , \quad (1.37)$$

où  $q$  représente la source d'ions (p.i.  $m^{-3} s^{-1}$ ) et  $\alpha$  le coefficient de recombinaison des petits ions ( $m^3 s^{-1}$ ).

Si nous voulons déterminer la fraction de particules portant  $j$  charges, il est nécessaire de résoudre simultanément l'ensemble des équations. Cependant, il n'existe pas de solution analytique de l'ensemble de ces équations en fonction du temps. Leur résolution a été étudiée numériquement par plusieurs auteurs. Nous pouvons citer les travaux de Adachi *et al.* (1985) sur la cinétique de charge des particules en milieu unipolaire ou bien ceux de Hoppel et Frick (1990b) ainsi que ceux de Harrison (1992) sur la charge électrique des aérosols en milieu bipolaire.

Nous allons voir par la suite, qu'il est toutefois possible de déterminer une solution de ces équations à l'état stationnaire, lorsque les termes différentiels sont nuls.

### V.3. L'état stationnaire de la charge électrique d'un aérosol

Lorsqu'un aérosol se trouve en présence d'une source constante d'ions bipolaires, il est possible de montrer (Hoppel et Frick 1990b, Harrison 1992) que la charge électrique de l'aérosol, ainsi que les concentrations en ions atteignent un état stationnaire. A cet égard, il existe plusieurs approches différentes pour déterminer la répartition des charges électriques sur un aérosol à l'état stationnaire.

La première approche est basée sur la théorie de la diffusion des ions positifs et négatifs, dont nous avons présenté les éléments dans le paragraphe précédent. Cette approche est utilisée dans les travaux de Gunn (1955), Clement et Harrison (1991a) et Poluektov *et al.* (1991).

Une seconde approche est basée sur le principe d'équipartition de l'énergie de Boltzmann, le fondement de cette approche repose sur la fréquence des collisions entre les ions et les particules (Keefe *et al.*, 1959). Cette deuxième approche est très largement utilisée en Physique des aérosols du fait de sa simplicité, on parle alors de la loi "d'équilibre de Boltzmann".

### V.3.1. L'équilibre de Boltzmann

Dès 1940, Lissowski suggère que la répartition des charges d'un aérosol exposé à des ions bipolaires s'effectue suivant une loi normale, en s'appuyant sur ses mesures de la charge électrique d'un nuage de gouttelettes d'huile exposées à des ions bipolaires. C'est en 1959 que Keefe *et al.* évoquent la loi de distribution de Boltzmann pour décrire la répartition exponentielle des charges électriques sur un aérosol. En supposant que l'aérosol est en équilibre électrique et thermodynamique avec les ions, les auteurs proposent d'inclure l'énergie électrostatique des particules dans la loi de distribution de Boltzmann.

Si nous appelons  $\delta E$  la différence entre l'énergie potentielle d'une particule neutre et celle d'une particule portant  $j$  charges élémentaires (cette énergie correspond en fait à l'énergie électrostatique de la particule chargée), le principe d'équipartition de l'énergie de Boltzmann permet d'écrire le rapport entre la fraction de particules neutres, et la fraction de particules portant  $j$  charges électriques (Keefe *et al.*, 1959) :

$$\frac{C_j}{C_0} = \exp\left(-\frac{\delta E}{k \cdot T}\right), \quad \text{avec} \quad \delta E = \frac{j^2 \cdot e^2}{8\pi \cdot \epsilon_0 \cdot r_p}, \quad (1.38)$$

où  $C_j$  représente la concentration de particules portant  $j$  charges élémentaires ( $m^{-3}$ ),  $C_0$  la concentration de particules neutres ( $m^{-3}$ ),  $k$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température (K),  $r_p$  le rayon de la particule (m),  $e$  la charge élémentaire (C) et  $\delta E$  l'énergie électrostatique de la particule (J).

Nous pouvons mettre la relation précédente sous la forme d'une loi normale centrée sur zéro et d'écart type  $\sigma$ , ce qui donne :

$$\frac{C_j}{C_t} = \frac{1}{\sqrt{2\pi \cdot \sigma^2}} \cdot \exp\left(\frac{-j^2}{2\sigma^2}\right), \quad \text{avec} \quad \sigma^2 = 4\pi\epsilon_0 \cdot \frac{k \cdot T \cdot r_p}{e^2}, \quad (1.39)$$

où  $C_t = \sum_j C_j$  représente la concentration totale de l'aérosol ( $m^{-3}$ ) et  $\sigma$  l'écart type de la distribution (nombre de charges élémentaires).

Nous remarquons que cette loi ne tient pas compte des différences de propriétés des ions bipolaires. Elle décrit une répartition symétrique des charges sur l'aérosol, conduisant à une charge électrique globalement nulle. Toutefois, Keefe *et al.* (1959) ont montré que cette loi est en bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus par Nolan et Kennan (1949).

Cette forme de la loi de Boltzmann est pourtant critiquée par Fuchs (1963), qui remet en question l'hypothèse d'équilibre thermodynamique. En effet, Fuchs considère que la charge électrique de l'aérosol en milieu bipolaire ne résulte pas d'un état d'équilibre, mais d'un état stationnaire des flux d'ions sur les particules, puisque les ions fixés sur l'aérosol ne peuvent pas être ensuite arrachés. A la même époque, Pollak et Metnieks (1963) ont montré que la loi de Boltzmann n'est pas applicable pour les particules de très petits diamètres ( $d_p < 0,03 \mu\text{m}$ ). Ils suggèrent alors, que l'énergie électrostatique de ces particules ne peut pas être exprimée à partir de l'énergie électrostatique d'une sphère chargée de diamètre équivalent. Dès lors, de nombreuses études ont été conduites en Physique des aérosols pour rechercher le fondement de cet équilibre.

Présentons succinctement les différents arguments sur la validité de l'équilibre de Boltzmann.

Mayya (1994) a démontré que la critique émise par Fuchs en 1963 est pleinement justifiée. Pour cela, il présente un raisonnement théorique basé sur un mécanisme hypothétique d'absorption et de désorption des ions sur les particules. Ses calculs montrent que l'état de charge obtenu en atmosphère bipolaire, serait totalement différent de celui décrit par l'équilibre de Boltzmann.

Matsoukas (1994) a argumenté la validité de l'équilibre de Boltzmann par des considérations énergétiques. Il montre que, lorsque le régime est continu, le travail nécessaire à la désorption d'un ion de la surface de la particule est équivalent au travail de la force électrostatique nécessaire pour la capture d'un ion de signe opposé à celui de la particule.

En revanche, dans le cas du régime moléculaire, l'approche à partir du travail de la force électrostatique n'est plus valable, car les effets électrostatiques sont négligeables devant la vitesse d'agitation thermique (sauf au voisinage de la surface de particule où la force image est importante). Matsoukas a également établi un critère afin de délimiter un domaine d'application de l'équilibre de Boltzmann. D'après ce critère, l'équilibre de Boltzmann peut être utilisé pour des particules de diamètre supérieur à  $0,12 \mu\text{m}$  (dans les conditions standards de pression et de température).

Malgré ces controverses, la loi de Boltzmann reste très utilisée du fait de sa simplicité. Plusieurs études montrent qu'il est également possible d'utiliser cette loi pour décrire la distribution des charges sur des aérosols composés de fibres ou bien d'agglomérats de particules, pourvu qu'on utilise un diamètre équivalent approprié (Wen *et al.* 1984, Rogak et Flagan 1992).

### V.3.2. Distribution des charges électriques de l'aérosol à l'état stationnaire

- L'approche de Gunn

Nous avons montré précédemment que l'équilibre de Boltzmann peut décrire la distribution des charges électriques d'un aérosol en milieu bipolaire. Toutefois, cette loi ne tient pas compte des propriétés physiques des petits ions présents dans le gaz (coefficients de diffusion, mobilités électriques, concentrations). Gunn (1954) a proposé une solution de la charge moyenne à l'état stationnaire en résolvant l'équation 1.34 pour  $dJ/dt = 0$ . L'auteur obtient ainsi l'expression du nombre moyen de charges ( $J$ ) en utilisant les expressions des coefficients de fixation valables pour le régime continu (eq. 1.30), soit :

$$J = \frac{1}{2\lambda} \ln\left(\frac{D_+ \cdot n_+}{D_- \cdot n_-}\right) \Leftrightarrow J = \frac{1}{2\lambda} \ln\left(\frac{\mu_+ \cdot n_+}{\mu_- \cdot n_-}\right), \quad (1.40)$$

avec  $\lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \epsilon_0 \cdot r_p \cdot k \cdot T}$ ,

où  $D_+$  et  $D_-$  représentent respectivement les coefficients de diffusion des ions positifs et négatifs ( $m^2 s^{-1}$ ),  $\mu_+$  et  $\mu_-$  les mobilités électriques respectives des ions positifs et négatifs ( $m^2 V^{-1} s^{-1}$ ),  $n_+$  et  $n_-$  les concentrations en petits ions positifs et négatifs ( $m^{-3}$ ) et  $r_p$  le rayon des particules (m).

Par la suite, Gunn (1955) propose une représentation de la distribution des charges électriques de l'aérosol par une loi normale centrée sur  $J$  et dont l'écart type  $\sigma$  a pour expression :

$$\sigma^2 = 4\pi\epsilon_0 \cdot \frac{k \cdot T \cdot r_p}{e^2} . \quad (1.41)$$

Nous pouvons remarquer que le nombre moyen de charges est fonction d'un "paramètre d'asymétrie des ions" (Clement et Harrison, 1991a). Ce paramètre représente le rapport entre les conductibilités électriques unipolaires dues aux ions positifs et négatifs, et donc d'après la relation 1.25, l'asymétrie entre les flux d'ions positifs et négatifs sur une particule. Signalons que lorsque ce rapport est égal à 1, nous retrouvons la distribution définie par l'équilibre de Boltzmann.

- L'approche de Clement et Harrison

Clement et Harrison (1991a) ont montré qu'il est possible d'établir une expression entièrement analytique décrivant la distribution des charges d'un aérosol en milieu bipolaire à l'état stationnaire. Cette expression a également été établie à la même époque par une équipe russe (Poluektov *et al.*, 1991), de façon indépendante.

Les auteurs ont établi cette expression à partir du système d'équations différentielles décrivant l'évolution complète de la distribution des charges de l'aérosol (eq. 1.35). Nous n'exposerons pas ici le détail complet du calcul mais seulement les principales étapes. Signalons par ailleurs, que Poluektov *et al.* n'ont pas basé leur raisonnement directement sur l'équilibre entre les flux d'ions, mais ils ont mis en œuvre une probabilité de changement de l'état de charge des particules. Ces mêmes auteurs détaillent dans une autre étude (Emets *et al.*, 1993) leur raisonnement, qui leur permet également d'obtenir une généralisation prenant en compte un processus de charge multiple (diffusion d'ions possédant plus d'une charge). Ce raisonnement leur a également permis d'étudier le cas particulier de la charge d'un aérosol ultra fin (régime moléculaire), en tenant compte des différences entre les propriétés des ions positifs et négatifs. Par la suite, Filippov (1994) a étendu le calcul au cas des particules non sphériques.

Si nous sommes à l'état stationnaire l'équation 1.35 nous donne l'égalité :

$$\beta_{1j-1} \cdot n_+ \cdot C_{j-1} - \beta_{-1j} \cdot n_- \cdot C_j = \beta_{1j} \cdot n_+ \cdot C_j - \beta_{-1j+1} \cdot n_- \cdot C_{j+1}, \forall j \in ]-\infty, +\infty[. \quad (1.42)$$

Comme une particule ne peut pas acquérir un nombre infini de charges, il existe donc un nombre  $k$  tel que  $\forall |j| > k$ , nous avons  $C_j = 0$  et  $\beta_{1j-1} \cdot n_+ \cdot C_{j-1} \ll 1$ . Nous pouvons ainsi montrer que la relation 1.42 est vérifiée pour :

$$\frac{C_{j+1}}{C_j} = \frac{\beta_{1j} \cdot n_+}{\beta_{-1j+1} \cdot n_-} \quad \forall |j| < k-1 . \quad (1.43)$$

Nous obtenons ainsi une relation de récurrence entre  $C_j$  et  $C_{j+1}$ , en multipliant terme à terme la relation précédente pour un indice  $i$  compris entre 1 et  $j$ , puis en simplifiant, il vient :

$$\frac{C_j}{C_0} = \left( \frac{n_+}{n_-} \right)^j \cdot \prod_{i=1}^j \frac{\beta_{1i-1}}{\beta_{-1i}} . \quad (1.44)$$

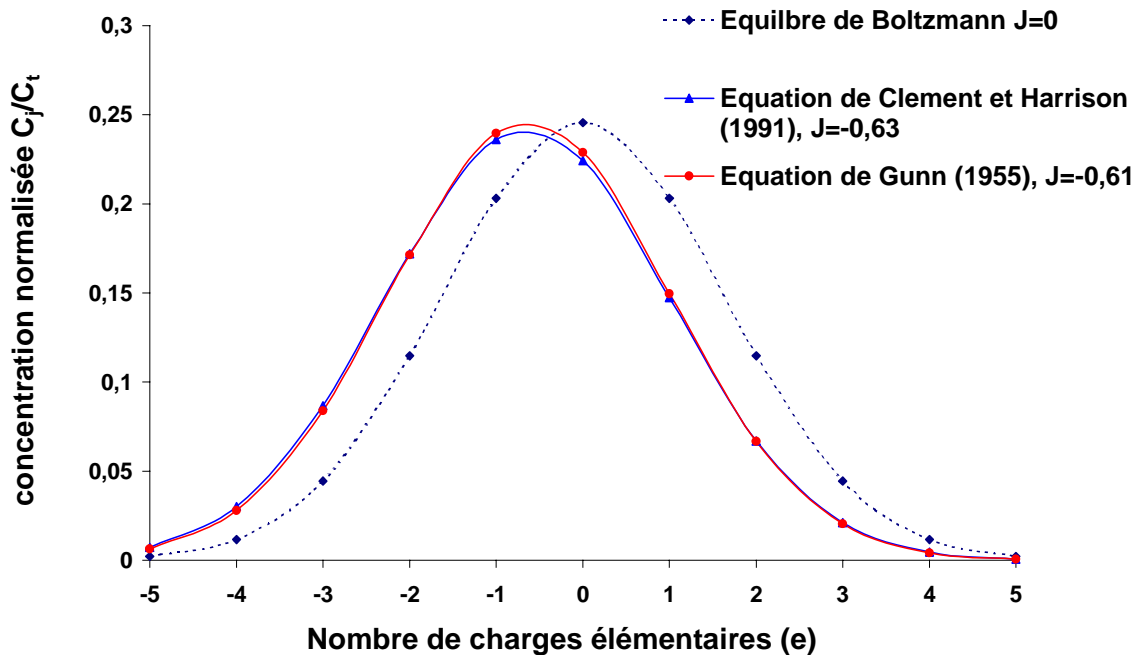
Clement et Harrison (1991a) ainsi que Poluektov *et al.* (1991) montrent que la relation précédente se simplifie lorsqu'on utilise les expressions des coefficients de fixation établies par Gunn (1954) (eq. 1.30) pour le régime continu. Nous obtenons ainsi la relation (Clement et Harrison 1991a, Poluektov *et al.* 1991) :

$$\frac{C_j}{C_0} = X^j \cdot \frac{\sinh(\lambda \cdot j)}{\lambda \cdot j} \cdot \exp(-\lambda \cdot j^2) , \quad (1.45)$$

$$\text{avec } X = \frac{\mu_+ \cdot n_+}{\mu_- \cdot n_-} , \text{ et } \lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \epsilon_0 \cdot r_p \cdot k \cdot T} . \quad (1.46)$$

Nous remarquons que la distribution des charges, définie par l'équation 1.45, est également fonction d'un paramètre d'asymétrie des ions ( $X$ ), identique à celui déterminant la charge proposée par Gunn (eq. 1.40). En revanche, nous notons que cette nouvelle distribution n'est plus symétrique par rapport à une valeur moyenne. Toutefois, Clement et Harrison (1992) montrent que la charge moyenne de l'aérosol calculée (numériquement) à partir de l'équation précédente est très proche de la charge moyenne définie par la relation de Gunn (eq.1.40). En effet, par exemple, pour un paramètre d'asymétrie  $X=0,79$  (Gensdarmes *et al.*, 1999) et un diamètre de particule  $dp=0,3 \mu\text{m}$ , la différence entre les deux calculs est inférieure à 4 %.

Nous représentons sur la figure 1.3 les différentes distributions des charges théoriques, obtenues pour un aérosol monodispersé de diamètre  $d_p=0,3 \mu\text{m}$  et pour un paramètre d'asymétrie  $X=0,79$ . Ces distributions sont représentées dans les conditions standard de pression et de température. Nous remarquons que les distributions théoriques de Gunn (1955) et de Clement et Harrison (1991a), ainsi que les charges moyennes, sont très proches.



**Figure 1.3** - Comparaison des différentes expressions théoriques de la distribution des charges électriques d'un aérosol en milieu bipolaire, pour un diamètre de particules égal à  $0,3\mu\text{m}$  et un paramètre d'asymétrie égal à  $0,79$ ,  $C_t$  représente la concentration totale de l'aérosol.

Signalons que dans l'équation 1.45, lorsque  $X=1$  et pour les grosses particules ( $d_p > 1 \mu\text{m}$ ), le terme  $\sinh(\lambda \cdot j) / \lambda \cdot j$  tend vers 1, et nous retrouvons encore l'expression classique de l'équilibre de Boltzmann. Par contre, lorsque  $X=1$  et pour les faibles diamètres ( $d_p < 0,1 \mu\text{m}$ ), le terme  $\sinh(\lambda \cdot j) / \lambda \cdot j$  devient important, et peut donc modifier sensiblement la distribution des charges.

Clement et Harrison (1991a) ont rapporté ce fait dans leur étude en comparant, dans le cas où  $X=1$ , leur nouvelle expression avec des mesures expérimentales des fractions de particules portant une seule charge (Pollak et Metnieks 1963, Hussin *et al.* 1983), et ceci pour différents diamètres. Ces résultats sont également comparés avec la fraction de particules

portant une charge, obtenue d'après l'équilibre de Boltzmann. Leur étude a montré que la nouvelle expression (eq. 1.45) est en meilleur accord que l'équilibre de Boltzmann, avec les données expérimentales, surtout pour les aérosols de diamètres inférieurs à 0,1  $\mu\text{m}$ . Ce résultat peut sembler paradoxal, car Clement et Harrison ont utilisé pour établir leur expression, des coefficients de fixation valables seulement dans le régime continu, donc pour des particules de diamètres supérieurs à 0,1  $\mu\text{m}$ .

Finalement, l'ensemble des études réalisées sur la théorie de la charge électrique des aérosols en milieu bipolaire, nous montre que le facteur exponentiel de Boltzmann  $\{ \exp(\delta E/kT) \}$  est toujours présent dans les différentes formes de la distribution des charges électriques.

Clement *et al.* (1995) ont étudié l'origine de ce facteur, et montrent qu'il est bien distinct des autres paramètres d'origines cinétiques définissant l'état de charge d'un aérosol. Ils ont montré que les expressions des coefficients de fixation définis par Gunn (1954) (eq. 1.30) peuvent se décomposer en deux termes. Le premier terme ( $4\pi \cdot r_p \cdot D$ ) exprime classiquement, par analogie avec la théorie de la coagulation (Fuchs, 1964), le coefficient de collision entre les ions et les particules. Le deuxième terme correspond à un facteur de pénétrabilité des ions dans le champ électrique d'une particule chargée. Dans le cas d'un ion et d'une particule de même signe, ce facteur correspond à la barrière de potentiel électrostatique que l'ion doit franchir par diffusion pour augmenter la charge de la particule. Dans le cas d'un ion et d'une particule de signes opposés, ce facteur est proche de 1 et la fixation est principalement due à la mobilité de l'ion.

- Les autres approches

Nous avons vu qu'il n'existe pas de relation unique pour déterminer la distribution des charges électriques d'un aérosol. Il existe plusieurs théories applicables suivant le diamètre de l'aérosol, principalement le modèle de Fuchs (1963) pour les aérosols ultra fins et les modèles de Gunn (1955) ou de Clement et Harrison (1991a) pour les aérosols de diamètre supérieur à 0,1  $\mu\text{m}$ .

En métrologie des aérosols, les techniques de mesures de la granulométrie d'un aérosol, fondées sur les propriétés électriques, nécessitent souvent la connaissance de la distribution des charges de l'aérosol, notamment pour l'analyse des aérosols de diamètre



compris entre 0,005  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$  (Knutson et Whitby, 1975). Afin de disposer d'une relation unique sur l'ensemble du domaine de dimension précédent, Wiedensohler (1988) a établi une relation empirique à partir du modèle de Fuchs. Nous pouvons également citer les travaux de Métayer *et al.* (1984) qui proposent une relation empirique sur un domaine de dimension plus restreint (0,01  $\mu\text{m}$  - 0,025  $\mu\text{m}$ ).

#### V.4. La durée de mise à l'état stationnaire

Nous avons vu précédemment que la distribution des charges d'un aérosol évolue en fonction des caractéristiques ioniques du milieu rencontré. Néanmoins, lorsque la concentration en ions dans le milieu est stable (présence d'un terme source), l'aérosol acquiert une distribution des charges électriques stationnaire. Le temps mis pour atteindre cet état stationnaire dépend de l'état de charge initial de l'aérosol et de la concentration en ions à l'équilibre. La connaissance de ce temps d'évolution est particulièrement importante en métrologie des aérosols (Cooper et Reist, 1973).

##### V.4.1. Temps d'évolution de la charge électrique

Gunn (1954) a montré que le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre de Boltzmann dans le cas d'un aérosol dont toutes les particules sont initialement neutres, s'exprime par la relation :

$$\tau_e = \frac{\epsilon_0}{4\pi \cdot e \cdot n_t \cdot \bar{\mu}}, \quad (1.47)$$

où  $\tau_e$  représente le temps de mise à l'équilibre (s),  $n_t$  la concentration totale en ions ( $\text{m}^{-3}$ ) et  $\bar{\mu}$  la mobilité moyenne des ions positifs et négatifs  $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ .

Nous remarquons que cette expression est équivalente à l'expression 1.20 caractérisant la cinétique du mécanisme de fixation des petits ions sur un aérosol.

Par la suite, Cooper et Reist (1973) montrent que ce temps de mise à l'équilibre peut être considéré comme un temps caractéristique de charge ou de neutralisation d'un aérosol par

diffusion des ions. En effectuant une analogie avec les propriétés dynamiques des aérosols, ce temps peut se définir comme un temps de relaxation électrique.

L'utilisation pratique de ce paramètre nécessite la connaissance des propriétés des petits ions présents dans le milieu. En se reposant sur des valeurs indiquées par Whitby et Clark (1966), Cooper et Reist ont utilisé l'expression suivante du temps de mise à l'équilibre, afin de caractériser différents neutraliseurs :

$$\tau_e = 0,28 \times 10^{12} / n_t, \quad (1.48)$$

où  $n_t$  représente la concentration totale en ions ( $m^{-3}$ ).

#### V.4.2. Le produit $n_t \times t$

Liu et Pui (1974a) ont également étudié théoriquement, puis expérimentalement un critère de neutralisation de l'aérosol en milieu bipolaire. Leur étude montre que l'efficacité de neutralisation d'un aérosol dépend du produit de la concentration totale en ions dans le milieu ( $n_t$ ) par le temps de séjour de cet aérosol dans le "bain" d'ions ( $t$ ). Les auteurs soulignent que le produit  $n_t \times t$  nécessaire pour qu'un aérosol, dont la charge initiale correspond à la limite de Rayleigh (Renoux et Boulaud 1998), atteigne l'équilibre de Boltzmann est différent selon le régime moléculaire ou continu. Ils indiquent les deux conditions suivantes :

$$n_t \times t > 6 \times 10^{12} \text{ ions } m^{-3} \text{ s pour le régime continu, et}$$

$$n_t \times t > 1 \times 10^{11} \text{ ions } m^{-3} \text{ s pour le régime moléculaire.}$$

#### V.5. *La variation de la charge moyenne d'un aérosol en fonction de l'intensité d'ionisation*

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que, dans les différentes expressions permettant de déterminer la charge moyenne ou bien la distribution des charges électriques d'un aérosol, apparaît un paramètre d'asymétrie ionique ( $X = \mu_+ \cdot n_+ / \mu_- \cdot n_-$ ). L'application de ces expressions nécessite donc la connaissance des mobilités et des concentrations ioniques dans le milieu. Les concentrations en ions dans le milieu sont souvent déterminées, en première approximation, en supposant que le processus de recombinaison des ions est

dominant, ce qui conduit à une égalisation des concentrations en ions positifs et négatifs. Le paramètre d'asymétrie se réduit alors à  $X=\mu_+/\mu_-$ . Il est évident que l'hypothèse précédente est valable seulement lorsque nous pouvons négliger la fixation des ions sur l'aérosol. Cette hypothèse ne peut donc pas s'appliquer au cas des petits ions atmosphériques, puisque nous savons que l'aérosol atmosphérique joue un rôle essentiel dans l'établissement des concentrations en ions (Renoux et Boulaud, 1998).

Bricard *et al.* (1965) ont déterminé une expression pour calculer la charge moyenne d'un aérosol, et permettant de prendre en compte l'action de l'aérosol sur la détermination du rapport des concentrations ioniques. Pour établir leur expression, les auteurs font l'hypothèse que le milieu est électriquement neutre, ce qui permet de relier la concentration de l'aérosol avec celles des ions bipolaires. Nous avons donc la relation :

$$n_+ - n_- + |J| \cdot C_t = 0 , \quad (1.49)$$

où  $n_+$  et  $n_-$  représentent les concentrations respectives en ions positifs et négatifs ( $m^{-3}$ ),  $C_t$  la concentration de l'aérosol ( $m^{-3}$ ) et  $J$  le nombre moyen de charges électriques des particules.

Nous ne détaillerons pas le calcul réalisé par Bricard *et al.* (1965), nous indiquons seulement le résultat final valable pour le régime continu :

$$J^2 = \frac{Q}{C_t^2} \cdot \frac{1 - \exp(-2 \cdot \lambda \cdot J)}{8\pi \cdot \lambda \cdot D_- \cdot r_p} \cdot \left( 1 - \frac{D_-}{D_+} \cdot \exp(2 \cdot \lambda \cdot J) \right) , \quad (1.50)$$

$$\text{avec } \lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \epsilon_0 \cdot r_p \cdot k \cdot T} , \quad \text{et} \quad Q = q - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- ,$$

où  $q$  représente le taux de production des ions ( $m^{-3} s^{-1}$ ) dans le milieu,  $Q$  le nombre de petits ions susceptibles d'être fixés par unité de temps et de volume sur l'aérosol (ce qui correspond à l'intensité d'ionisation effective de l'aérosol),  $C_t$  la concentration de l'aérosol ( $m^{-3}$ ) et  $D_+$  et  $D_-$  les coefficients de diffusion respectifs des petits ions positifs et négatifs ( $m^2 s^{-1}$ ).

La relation précédente peut également être exprimée en fonction des mobilités électriques ( $\mu_+$  et  $\mu_-$ ) des ions. Nous obtenons alors :

$$J^2 = \frac{Q}{C_t^2} \cdot \frac{\epsilon_0 \cdot (1 - \exp(-2 \cdot \lambda \cdot J))}{e \cdot \mu_-} \cdot \left( 1 - \frac{\mu_-}{\mu_+} \cdot \exp(2 \cdot \lambda \cdot J) \right) . \quad (1.51)$$

Nous représentons sur la figure 1.4 les évolutions de la charge moyenne (exprimée en nombre de charges élémentaires  $e$ ) d'un aérosol de diamètre  $dp=0,3 \mu\text{m}$  en fonction du paramètre  $Q/C_t^2$ , pour deux familles d'ions bipolaires. Nous avons tout d'abord représenté l'évolution obtenue avec des ions positifs et négatifs de mobilités respectives  $\mu_+=1,4 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  et  $\mu_-=1,8 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ , ces valeurs étant couramment utilisées pour les ions produits en laboratoire dans de l'air propre (Hoppel et Frick, 1990b). Nous avons ensuite représenté l'évolution obtenue pour le même aérosol mais pour des mobilités correspondant aux petits ions présents dans l'atmosphère  $\mu_+=1,1 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  et  $\mu_-=1,3 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  (Clement et Harrison, 1992).

Nous avons également représenté l'évolution de la charge d'un aérosol de diamètre supérieur, égal à  $0,6 \mu\text{m}$ .

Nous remarquons que lorsque le paramètre de charge ( $Q/C_t^2$ ) est inférieur à  $10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , la charge moyenne est pratiquement nulle et l'aérosol est alors à l'équilibre de Boltzmann. Ce cas correspond à une faible intensité d'ionisation dans le milieu ou à une forte concentration de l'aérosol. En revanche, lorsque  $Q/C_t^2 > 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , la charge moyenne atteint une valeur limite négative, fonction du rapport des mobilités  $\mu_+/\mu_-$ . Cette valeur limite est définie par la relation (Bricard *et al.*, 1965) :

$$J_{\text{lim}} = \frac{1}{2\lambda} \ln \left( \frac{\mu_+}{\mu_-} \right) . \quad (1.52)$$

Nous remarquons que cette valeur correspond au nombre moyen de charges déterminé par Gunn pour  $n_+ = n_-$ . En effet, lorsque l'intensité d'ionisation est élevée ou bien la concentration en aérosol faible, c'est la recombinaison qui détermine les concentrations en ions bipolaires, et tend à les égaliser.

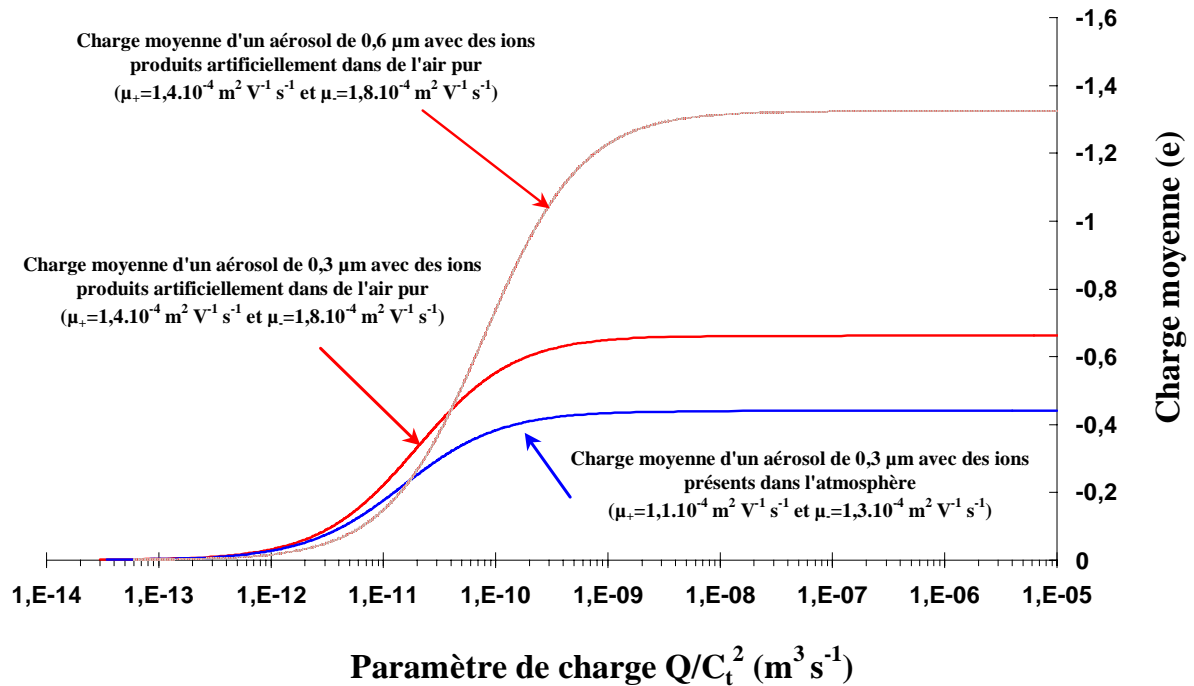


Figure 1.4 - Evolution de la charge moyenne en fonction de  $Q/C_t^2$ , pour des aérosols de diamètres égaux à 0,3 μm et 0,6 μm.

Plus récemment, Clement et Harrison (1991b) ont également établi une expression qui permet de déterminer l'évolution de la charge moyenne de l'aérosol en fonction de la concentration des ions et de l'aérosol dans le milieu. A partir de l'équation de Gunn (1.40), en introduisant la concentration moyenne en ions ( $\bar{n}$ ) et en supposant le milieu électriquement neutre (eq. 1.49), les auteurs montrent que le nombre moyen de charges peut s'écrire :

$$J = \frac{1}{2 \cdot \lambda + C_t / \bar{n}} \cdot \ln \left( \frac{\mu_+}{\mu_-} \right), \quad \text{pour } \delta n / 2\bar{n} \ll 1, \quad (1.53)$$

$$\text{avec } \bar{n} = \frac{1}{2} \cdot (n_+ + n_-), \quad \text{et } \delta n = n_+ - n_-.$$

Nous pouvons donc déduire, d'après les relations de Bricard *et al.* (1965) ou de Clement et Harrison (1991b), deux conditions pour qu'un aérosol en milieu bipolaire possède une charge électrique non négligeable. Premièrement, il doit exister une asymétrie entre les mobilités des ions positifs et négatifs, et deuxièmement, l'aérosol doit être faiblement concentré, ou la concentration en ions élevée.

Dans le tableau 1.3, nous résumons les différentes expressions de la distribution des charges d'un aérosol en présence d'ions bipolaires, ainsi que leur domaine d'application.

**Tableau 1.3** – Synthèse des différentes expressions de la charge électrique d'un aérosol en milieu bipolaire.

Expressions de la charge électrique	Domaine d'application
<p>Equilibre de Boltzmann (Keefe <i>et al.</i>, 1959)</p> $\frac{C_j}{C_t} = \frac{1}{\sqrt{2\pi \cdot \sigma^2}} \cdot \exp\left(\frac{-j^2}{2\sigma^2}\right) \quad \sigma^2 = 4\pi\epsilon_0 \cdot \frac{k \cdot T \cdot r_p}{e^2}$	<p><math>dp &gt; 0,1 \mu\text{m}</math> (Scheibel <i>et al.</i>, 1984). Paramètre d'asymétrie égal à 1.</p>
<p>Loi normale de Gunn (1955)</p> $J = \frac{1}{2\lambda} \ln\left(\frac{\mu_+ \cdot n_+}{\mu_- \cdot n_-}\right) \quad \lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \epsilon_0 \cdot r_p \cdot k \cdot T}$	<p>Régime continu <math>dp &gt; 0,1 \mu\text{m}</math>. Paramètre d'asymétrie différent de 1.</p>
<p>Expression de Boltzmann modifiée Clement et Harrison (1991a)</p> $\frac{C_j}{C_0} = \left(\frac{\mu_+ \cdot n_+}{\mu_- \cdot n_-}\right)^j \cdot \frac{\sinh(\lambda \cdot j)}{\lambda \cdot j} \cdot \exp(-\lambda \cdot j^2)$	<p>Régime continu, paramètre d'asymétrie différent de 1. Meilleur que Boltzmann dans le cas symétrique aux faibles diamètres (<math>dp &gt; 0,01 \mu\text{m}</math>).</p>
<p>Expression de Bricard <i>et al.</i> (1965)</p> $J^2 = \frac{Q}{C_t^2} \cdot \frac{\epsilon_0 \cdot (1 - \exp(-2 \cdot \lambda \cdot J))}{e \cdot \mu_-} \cdot \left(1 - \frac{\mu_-}{\mu_+} \cdot \exp(2 \cdot \lambda \cdot J)\right)$	<p>Régime continu, milieu globalement neutre. Fonction de l'intensité d'ionisation effective.</p>
<p>Expression de Clement et Harrison (1991b)</p> $J = \frac{1}{2 \cdot \lambda + C_t / \bar{n}} \cdot \ln\left(\frac{\mu_+}{\mu_-}\right)$	<p>Régime continu, milieu neutre. Calcul de <math>\bar{n}</math> suivant le processus dominant (recombinaison, fixation).</p>

## VI. La métrologie de la charge électrique des aérosols

### VI.1. *introduction*

Nous avons vu précédemment, qu'il existe beaucoup de travaux théoriques permettant de déterminer l'état de charge d'un aérosol en fonction de ses caractéristiques (dimension, forme et concentration des particules) ainsi que celles du milieu environnant (mobilités et concentrations des ions). La validation de ces théories nécessite la conception et le développement de nombreuses méthodes de mesure de la charge électrique portée par l'aérosol.

Nous pouvons en distinguer deux types, d'une part la mesure "statique", d'autre part, la mesure "dynamique" de la charge électrique des particules (Brown, 1997). La mesure statique repose sur le transfert de charge ou sur l'induction électrostatique dans une cage de Faraday (Phillips et Gunn 1954, Whitby 1976, Vercoulen *et al.* 1991). En revanche, la mesure dynamique de la charge électrique repose sur la mesure de la vitesse de la particule, acquise dans un champ électrique.

Parmi les méthodes dynamiques, nous pouvons, distinguer les techniques de mesure directes et les techniques de mesure indirectes de la vitesse d'une particule chargée dans un champ électrique.

Les techniques directes de mesure de la vitesse permettent d'obtenir immédiatement la mobilité de la particule et ainsi sa charge électrique (eq. 1.3), à condition qu'on connaisse son diamètre. En revanche, les techniques de mesure indirectes nécessitent deux étapes. Il faut tout d'abord sélectionner les particules en fonction de leur vitesse, puis ensuite détecter (ou analyser) les particules sélectionnées. Signalons que la détection des particules peut s'effectuer, entre autre, grâce à des méthodes de mesure "statiques" (fig. 1.5).

Tout d'abord, il nous parait important de synthétiser les différents principes de mesure de la charge électrique sur la figure 1.5. Nous voyons que les techniques sont diverses, et peuvent se combiner entre elles. Précisons toutefois que, lorsque l'aérosol n'est pas monodispersé, l'emploi ou la combinaison de la plupart des techniques nécessite l'utilisation d'algorithmes d'inversion des données plus ou moins sophistiqués (Knutson 1976, Mazumder *et al.* 1983a, Renoux et Boulaud 1998), car la relation entre la charge électrique et la mobilité d'une particule n'est pas univoque.

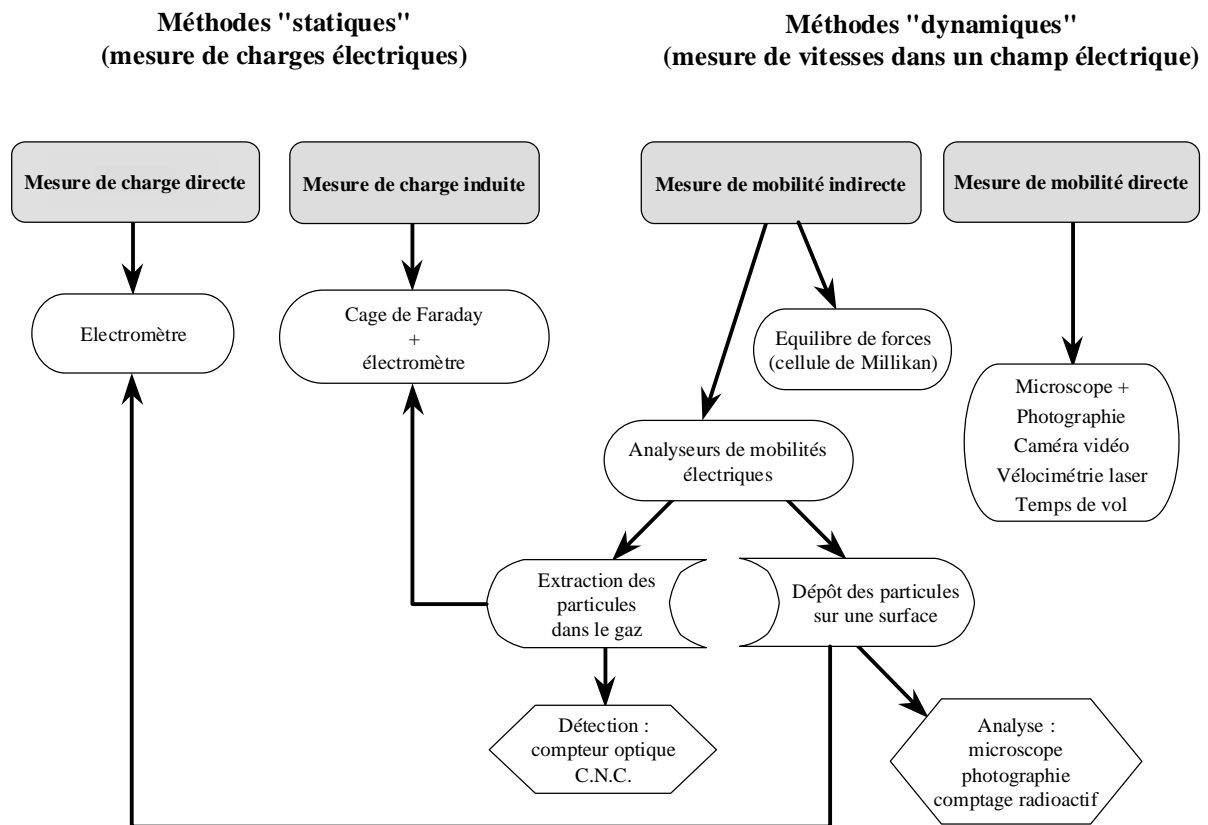


Figure 1.5 - Synthèse des différentes méthodes de mesure de la charge électrique d'un aérosol.

## VI.2. Les méthodes "dynamiques" de mesure directe de la charge électrique

Ces méthodes utilisent généralement, une cellule d'observation des particules dans laquelle on applique un champ électrique continu ou alternatif. Les particules peuvent être en chute libre ou bien entraînées par un flux d'air dans la cellule. Sous l'action du champ électrique, une particule chargée acquiert une vitesse de dérive qui peut être mesurée à l'aide de différentes techniques : observation au microscope, photographie, imagerie vidéo ou bien vélocimétrie laser doppler.

- Méthodes utilisant un microscope.

L'expérience célèbre de Millikan utilise cette méthode. Dans ce cas, on cherche à immobiliser la particule dans la cellule de mesure en équilibrant sa vitesse limite de chute et la force électrostatique qui agit sur elle.



Ivanov *et al.* (1974) ont mis au point une méthode destinée à l'analyse de la charge électrique des aérosols fortement radioactifs ("chauds") émetteurs bêta. Cette méthode consiste à appliquer dans une cellule de mesure éclairée par un faisceau lumineux, un champ électrique pulsé d'amplitude ajustable. La charge électrique est déduite de l'observation des trajectoires des particules radioactives à l'aide d'un microscope.

- Méthodes utilisant la photographie.

Wells et Gerke (1919) ont mis au point une méthode permettant de déterminer la granulométrie d'un aérosol chargé. Pour cela, ils utilisent un condensateur plan vertical, l'aérosol pénètre dans celui-ci par sédimentation, puis un champ électrique alternatif est appliqué entre les électrodes. Un appareil photographique couplé à un microscope permet de déterminer les trajectoires des particules illuminées par un faisceau de lumière. L'amplitude des oscillations observées est fonction de la mobilité des particules. Nous schématisons sur la figure 1.6, la cellule de mesure employée par les auteurs.

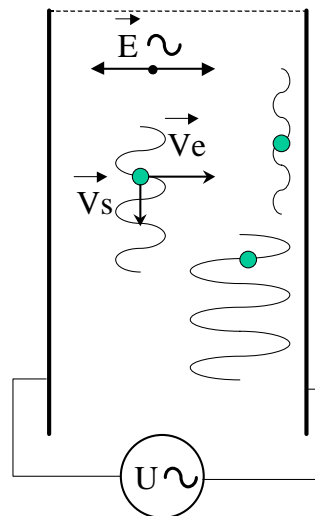


Figure 1.6 - Schéma d'une cellule d'observation avec un champ électrique alternatif

Plus tard, Woessner et Gunn (1956) ont adapté ce dispositif expérimental pour la mesure de la distribution des charges d'un aérosol polydispersé de gouttes d'eau, exposées à des rayons X. Le diamètre des gouttes était compris entre 2 et 4  $\mu\text{m}$ . Leurs observations sont en bon accord avec la distribution des charges théorique établit par Gunn (1955), si on

suppose les conductibilités électriques positive et négative égales. Les auteurs expliquent ce résultat par une pollution du gaz porteur de l'aérosol analysé.

Par la suite, ces mêmes auteurs (Gunn et Woessner, 1956) ont réalisé de nouvelles expériences toujours sous rayon X, mais cette fois-ci, en contrôlant avec précaution les différents paramètres expérimentaux. Par exemple, ils contrôlent mieux la dispersion en diamètre du nuage de gouttelettes ainsi que la pureté du gaz porteur. De plus, ils effectuent la mesure des conductibilités électriques des petits ions dans le milieu, à l'aide d'un condensateur cylindrique. Ils mesurent ainsi un rapport d'asymétrie entre les conductibilités positive et négative égal à 0,8. Les distributions des charges obtenues, sont logiquement décalées vers des valeurs négatives. Malgré la dispersion de leurs mesures, ces auteurs montrent que leurs résultats sont en assez bon accord avec l'équation de Gunn (1.40).

Ivanov *et al.* (1969) ont également utilisé une cellule de mesure, composée d'un condensateur plan, mais avec un champ continu, ceci afin de déterminer l'auto-chargement d'un aérosol radioactif émetteur alpha. Leur cellule est illuminée par un faisceau de lumière saccadé par l'intermédiaire d'un obturateur automatique, puis le déclenchement des photographies est synchronisé avec le mouvement de l'obturateur.

- Méthodes utilisant l'analyse d'image de particules

Adachi *et al.* (1985) ont présenté une méthode permettant de déterminer les fractions positive, négative et neutre d'un aérosol ultra-fin en milieu bipolaire. Il s'agit de faire grossir l'aérosol ultra-fin par condensation de vapeur (Okuyama *et al.*, 1984), puis de l'introduire dans un condensateur, où il est soumis à un champ électrique et à la sédimentation. Un volume de mesure est créé grâce à un faisceau laser et finalement, les fractions chargées et neutre sont déterminées par une caméra en fonction du sens de dérive des particules dans le champ électrique.

Plus tard Adachi *et al.* (1989) ont appliqué cette méthode pour déterminer les fractions chargées d'un l'aérosol après son exposition avec des ions bipolaires, créés par différentes sources d'Américium 241 de quelques micro Curie ( $\mu\text{Ci}$ ). Les aérosols analysés ont des diamètres compris entre  $0,1 \mu\text{m}$  et  $1 \mu\text{m}$  et des concentrations pouvant dépasser  $10^7 \text{ p cm}^{-3}$ . Ils ont également mesuré la concentration en ions négatifs dans le milieu.

Leur résultats expérimentaux montrent, que les fractions positive et négative de l'aérosol augmentent par rapport à la fraction neutre, lorsque le taux de production des ions ou

bien lorsque leur concentration augmente. Nous pouvons noter que ce résultat peut être interprété à l'aide de la relation de Bricard *et al.* (1965) (eq. 1.51). Par ailleurs, les auteurs montrent que, pour les aérosols fortement concentrés ( $C > 10^6$  p.  $\text{cm}^{-3}$ ), la concentration des ions produits par la source radioactive devient insuffisante pour neutraliser efficacement les particules.

La technique décrite précédemment permet également de mesurer la vitesse des particules dans le champ électrique et donc d'obtenir la distribution des charges d'un aérosol monodispersé. Adachi *et al.* (1993) l'ont utilisée pour mesurer la distribution des charges d'un aérosol après passage dans un neutraliseur à effet couronne. Ce type de neutraliseur (Whitby, 1961) permet de faire varier facilement les taux de productions en ions de chaque signe, et d'obtenir des concentrations en ions plus élevées qu'avec une source radioactive. Les auteurs ont mesuré également les courants d'ions de chaque polarité produits par les effets couronne. Leur étude montre que les distributions des charges obtenues sont en assez bon accord avec les rapports des courants positifs et négatifs mesurés. Signalons toutefois, que les mesures des courants d'ions bipolaires ne sont pas réalisées dans la zone de mélange des ions et de l'aérosol.

- Méthode utilisant la vélocimétrie laser doppler

Un système de mesure par vélocimétrie laser doppler (LDV), développé par Mazumder *et al.* (1983a) permet de déterminer simultanément la distribution des charges de l'aérosol et sa distribution granulométrique. Les particules à caractériser sont introduites dans un champ électrique alternatif, celles qui sont chargées vont donc osciller dans le champ. Le diamètre aérodynamique est alors déterminé en fonction du retard de phase de la particule dans le champ dû à son inertie, en utilisant les mesures de vitesse effectuées par LDV. La charge électrique est ensuite mesurée en fonction du sens et de l'amplitude des oscillations. L'avantage de cette méthode est de pouvoir analyser des aérosols polydispersés.

Les techniques de vélocimétrie laser sont de plus en plus développées en Physique des aérosols car elles permettent d'effectuer des mesures in-situ. Cependant leur mise en œuvre reste difficile. Pour exemple, nous pouvons citer les travaux de Saunders et Brown (1998) sur la mesure de la mobilité des particules dans un champ électrique continu, ou bien les travaux de Rader *et al.* (1998) sur la mesure de la vitesse des particules dans un faisceau annulaire.

### VI.3. Les analyseurs de mobilité électrique (ou méthodes "dynamiques" indirectes)

- Introduction

Les analyseurs de mobilité électrique sont des appareils couramment utilisés en métrologie des aérosols. Ces dispositifs sont constitués par des condensateurs plans ou cylindriques à l'intérieur desquels l'aérosol circule en écoulement laminaire. Ils combinent les effets aérauliques et électriques afin de sélectionner les particules en fonction de leur mobilité électrique. En effet, dans un tel analyseur, les particules chargées sont soumises d'une part, à une force de traînée qui entraîne les particules (si la pesanteur et la diffusion sont négligeables) le long des lignes de courant du fluide porteur, d'autre part, à une force électrostatique qui permet aux particules de changer de ligne de courant. Nous représentons ces deux actions sur la figure 1.7.

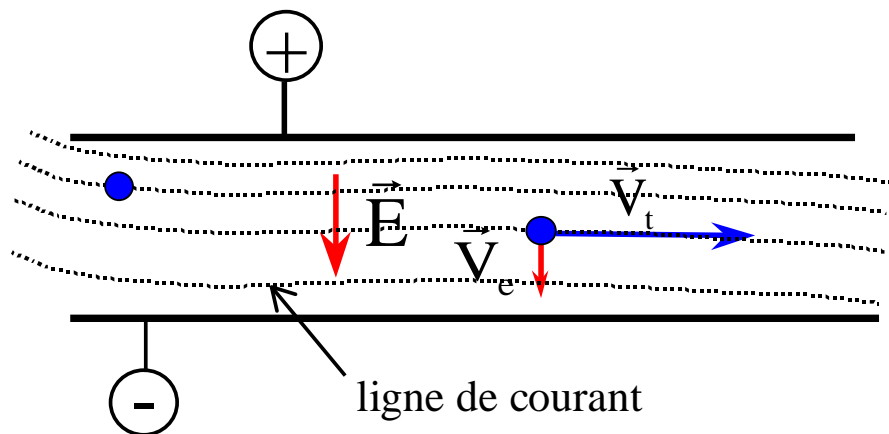


Figure 1.7 - Schéma de principe d'un analyseur de mobilité électrique.

Les analyseurs de mobilité électrique peuvent être utilisés pour précipiter les particules sur des surfaces de collection en fonction de leur mobilité, ou bien pour extraire du gaz porteur une certaine fraction de particules ayant une mobilité bien définie. On peut distinguer trois types d'analyseurs de mobilité électrique en fonction des spectres de mobilités des particules qui ressortent de l'analyseur, ces spectres correspondent en fait aux fonctions de transferts des analyseurs.

Les analyseurs d'ordre 0 n'effectuent pas de différenciation, les analyseurs d'ordre 1 effectuent une différenciation, et les analyseurs d'ordre 2 effectuent deux différenciations sur le spectre de mobilité initial de l'aérosol. Chacun de ces appareils est caractérisé par sa fonction de transfert (Knutson et Whitby, 1975).

Signalons qu'il existe plusieurs géométries de l'écoulement pour les analyseurs plans : l'écoulement longitudinal ou l'écoulement radial (Mesbah, 1994). En revanche, les analyseurs cylindriques sont tous à écoulement axial. Ces différents appareils doivent être utilisés conjointement avec un détecteur d'aérosols, afin de constituer un système de mesure global de la mobilité électrique. Le détecteur d'aérosols peut être employé, soit pour analyser la fraction d'aérosol déposée sur les électrodes, soit pour analyser celle transmise à travers l'analyseur (fig 1.5).

A partir de la mesure de la mobilité électrique, ces systèmes permettent d'obtenir la distribution des charges électriques (Pourprix, 1973) ou la distribution granulométrique (Hoppel, 1978) de l'aérosol. Signalons également, que les analyseurs d'ordre 1 permettent de réaliser des dépôts contrôlés de particules sur des surfaces (Mesbah *et al.* 1993, Mesbah 1994).

Passons rapidement en revue ces trois types d'analyseurs de mobilité électriques ainsi que leur applications pour l'étude des propriétés électriques des aérosols.

- Les analyseurs d'ordre 0

Nous avons déjà présenté un type d'analyseur d'ordre 0, utilisé pour la mesure des petits ions dans un gaz, le détecteur est alors un électromètre. Néanmoins, ce type d'analyseur peut être utilisé avec de nombreux détecteurs, tant pour le dépôt, que pour la transmission de l'aérosol. Sur la figure 1.8 nous schématisons les différents types de détecteurs associés aux analyseurs d'ordre 0.

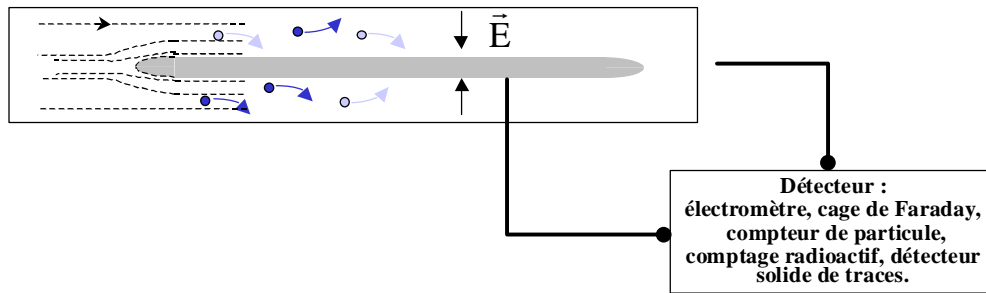


Figure 1.8 - Système de mesure de la charge électrique utilisant un analyseur de mobilité d'ordre 0.

En ce qui concerne l'étude de la charge électrique des aérosols par dépôt dans un analyseur d'ordre 0, nous pouvons citer les travaux de Renoux (1961) puis ceux de Billard *et al.* (1965) sur la mesure du rapport des fractions positives et négatives d'un aérosol ultra-fin. Dans ces études, l'aérosol est préalablement marqué par les descendants du radon, puis collecté sur l'électrode centrale et enfin, il est détecté par comptage radioactif.

Plus récemment, Kvasnicka et Riley (1990) ont utilisé plusieurs condensateurs plans en parallèle afin de mesurer la charge moyenne des aérosols radioactifs issus des mines d'Uranium. Ils analysent l'activité surfacique déposée sur les plaques de collection de l'analyseur, puis en postulant une loi de charge de l'aérosol en fonction de son diamètre, ils en déduisent sa charge moyenne. Leur étude montre ainsi que la charge médiane en activité d'un aérosol d'Uranium de diamètre égal à  $1 \mu\text{m}$  est environ  $\bar{J}=33 \times e$ . Cependant, les auteurs précisent que l'incertitude de leur mesure est importante.

Nous pouvons également citer les travaux de Clement (1998) sur l'application des analyseurs plans d'ordre 0 pour l'étude de la charge électrique des aérosols fortement radioactifs. En effet, Clement (1997) a montré théoriquement que, contrairement à un aérosol inactif, le dépôt d'un aérosol radioactif monodispersé n'est pas uniforme le long des plaques de collection de l'analyseur. Ce résultat est dû à l'auto-chargement de l'aérosol dans le condensateur. En calculant les équations des trajectoires pour des particules dont la charge électrique peut varier à l'intérieur de l'analyseur, l'auteur en déduit un profil de dépôt qui est fonction de l'activité spécifique de l'aérosol.

Les analyseurs d'ordre 0 peuvent être également combinés avec un détecteur optique d'aérosols. On mesure alors la fraction d'aérosols transmise à travers le condensateur. Cette fraction transmise est caractérisée par la fonction de transfert de l'analyseur, qui donne la probabilité d'extraction d'une particule en fonction d'un paramètre qui est défini à partir de la mobilité des particules, de la géométrie et des conditions opérationnelles (débit volumique, tension) de l'analyseur. Nous représentons sur la figure 1.9 la fonction de transfert type des analyseurs d'ordre 0 (Renoux et Boulaud, 1998).

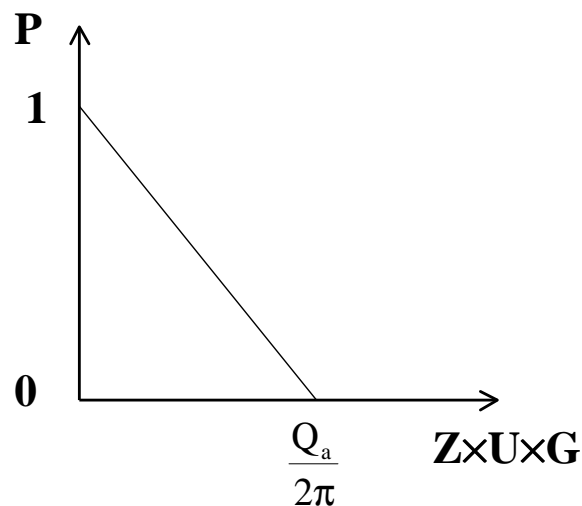


Figure 1.9 - Fonction de transfert d'un analyseur de mobilité d'ordre 0.

Sur cette figure, P représente la probabilité d'extraction d'une particule, Z la mobilité électrique de la particule, U la tension aux bornes de l'analyseur, G un paramètre géométrique de l'analyseur et  $Q_a$  le débit volumique d'aérosol dans l'analyseur.

Pollak et Metnieks (1962) ont utilisé un analyseur d'ordre 0 avec un compteur de particules pour déterminer la fraction neutre de l'aérosol en fonction de son diamètre. Les auteurs ont ainsi montré que la loi de Boltzmann ne donne pas un résultat satisfaisant pour l'aérosol ultra-fin.

John et Davis (1974) ont également appliqué cette technique pour déterminer la distribution des charges d'un aérosol monodispersé de diamètre égal à  $0,36 \mu\text{m}$ . L'aérosol est préalablement neutralisé à l'aide d'une source de  $1 \text{ mCi}$  de  $^{85}\text{Kr}$ , et la détection s'effectue à l'aide d'un compteur optique de particules. Leur résultat montre un bon accord avec la loi de Boltzmann, mais leur dispositif ne permet pas d'analyser séparément les particules positives et négatives.

- Les analyseurs d'ordre 1

De façon analogue aux analyseurs de mobilité d'ordre 0, les analyseurs d'ordre 1 sont utilisés, soit pour effectuer des dépôts de particules sur les électrodes, soit pour extraire une fraction de l'aérosol du gaz porteur. Afin d'effectuer une différenciation, ces analyseurs nécessitent la mise en œuvre, soit d'un écoulement d'air filtré adjacent à l'écoulement d'aérosol (Whitby et Clark, 1966), soit une électrode divisée (Tammet 1967, Kojima 1978).

Lorsque l'aérosol est monodispersé, les analyseurs d'ordre 1 permettent d'effectuer des dépôts distincts de particules suivant leur état de charge électrique et leur polarité. Megaw et Wells (1969) ont mis au point un analyseur de ce type, également appelé précipitateur électrostatique. Plus tard Yeh *et al.* (1976) ont utilisé une version miniature de cet appareil pour mesurer la charge électrique d'aérosols radioactifs. La figure 1.10, emprunté à Megaw et Wells illustre les différents dépôts de particules suivant leur état de charge.

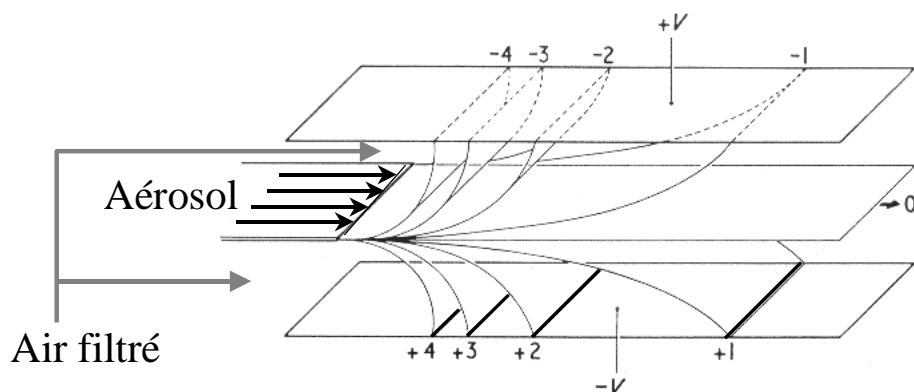


Figure 1.10 - Schéma d'un précipitateur électrostatique plan à écoulement longitudinal (Megaw et Wells, 1969).

A la même époque, Bricard *et al.* (1976) ont développé un dispositif analogue, pour l'étude de la charge électrique des aérosols en milieu bipolaire. La collection des particules s'effectue sur des plaques de verre, puis les dépôts sont analysés à l'aide d'un microscope. Ce dispositif a été utilisé dès 1973 par Pourprix, pour mesurer la distribution des charges d'un aérosol monodispersé de sphères de latex de diamètre égal à  $0,71 \mu\text{m}$ . Dans ses expériences, l'aérosol est soit exposé à des ions bipolaires produits par une source de 1 mCi de  $^{210}\text{Po}$ , soit exposé à l'ionisation naturelle de l'atmosphère pendant un temps suffisant pour atteindre l'état stationnaire.



Ainsi, en faisant varier l'intensité d'ionisation effective ( $Q$ ) et la concentration de l'aérosol ( $C_t$ ), l'étude de Pourprix (1973) a permis de valider l'expression établie par Bricard *et al.* (1965) (eq. 1.50) sur la charge moyenne d'un aérosol en fonction de  $Q/C_t^2$ . Le domaine de variation du paramètre  $Q/C_t^2$ , étudié par Pourprix est compris entre environ  $5 \times 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  et  $5 \times 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ . L'auteur montre ainsi de façon expérimentale que la distribution des charges de l'aérosol suit la loi d'équilibre de Boltzmann pour des valeurs de  $Q/C_t^2$  inférieures à  $10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  et atteint une valeur limite négative, qui est fonction du rapport des mobilités des ions ( $\mu_+/\mu_-$ ) lorsque  $Q/C_t^2 > 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , ce qui correspond tout à fait à ce que montre la figure 1.4.

Lorsque les analyseurs d'ordre 1 sont utilisés conjointement à un compteur de particules ou un électromètre, il est alors nécessaire de connaître la fonction de transfert de l'analyseur pour interpréter correctement les résultats. Signalons que l'aérosol doit être injecté à proximité de l'une des électrodes, ceci afin de pouvoir discriminer les mesures des particules positives et négatives suivant la polarisation du condensateur. Sur les figures 1.11 et 1.12, nous représentons le schéma de principe d'un analyseur d'ordre 1 plan à écoulement radial, également appelé SMEC (Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire; Mesbah, 1994) et la fonction de transfert générale des analyseurs de mobilité d'ordre 1.

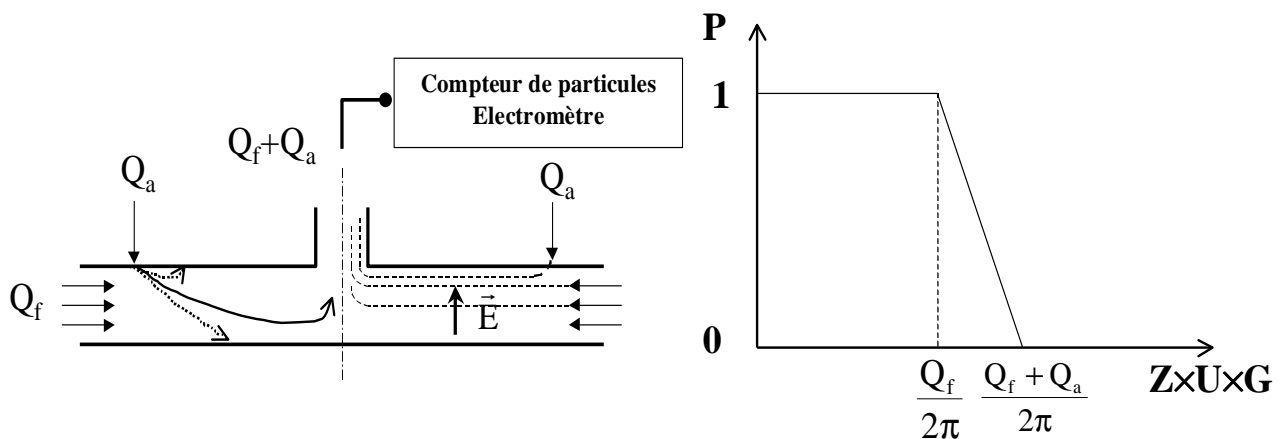


Figure 1.11- Schéma de principe d'un analyseur d'ordre 1 à écoulement radial (SMEC).

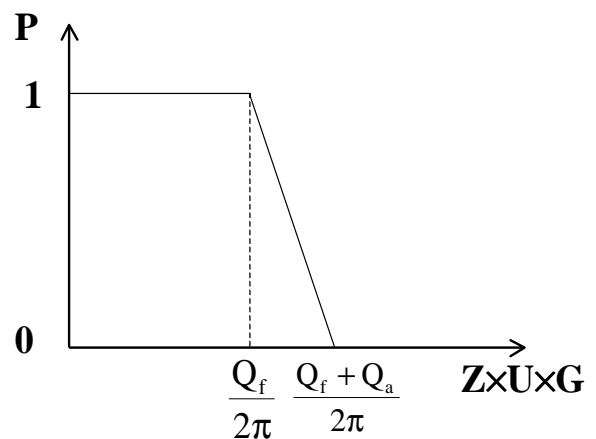


Figure 1.12- Fonction de transfert d'un analyseur d'ordre 1 ( $Q_a$  représente le débit d'aérosol et  $Q_f$  le débit d'air filtré dans l'analyseur).

• Les analyseurs d'ordre 2

Contrairement aux analyseurs d'ordre 0 et 1, les analyseurs de mobilité électrique d'ordre 2 sont utilisés uniquement pour extraire une bande étroite de mobilité ( $\Delta Z$ ) à partir de l'aérosol initial. Ces analyseurs sont également appelés analyseurs différentiels de mobilité électrique (ADME) et ils existent en version cylindrique ou plane, à écoulement axial (Haaf, 1980) ou radial (Mesbah, 1994). Nous représentons sur les figures 1.13 et 1.14, respectivement le schéma de principe d'un analyseur à écoulement radial (SMEC différentiel) et la fonction de transfert des analyseurs d'ordre 2.

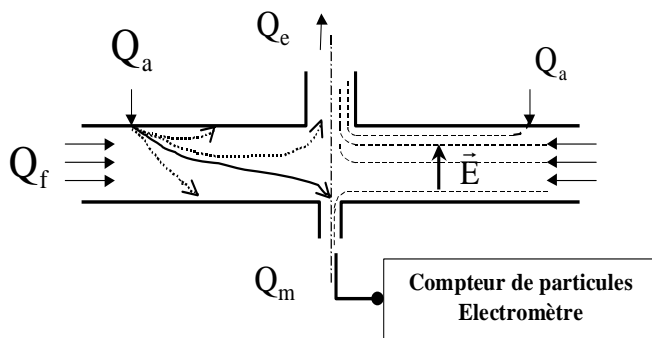


Figure 1.13- Schéma de principe d'un analyseur d'ordre 2 à écoulement radial (SMEC différentiel).

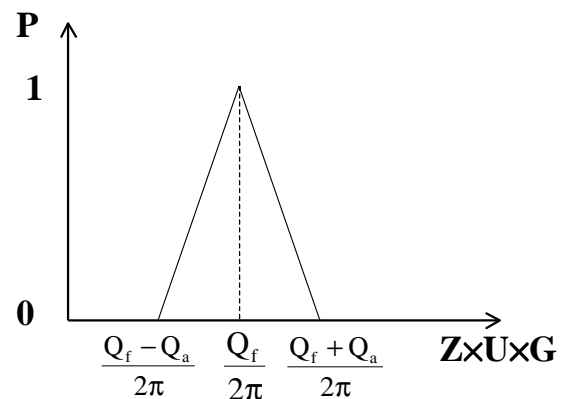


Figure 1.14 - Fonction de transfert d'un analyseur d'ordre 2 pour  $Q_f=Q_e$  et  $Q_a=Q_m$  ( $Q_a$  représente le débit d'aérosol et  $Q_f$  le débit d'air filtré dans l'analyseur).

Les analyseurs différentiels de mobilité électrique permettent donc de mesurer avec une grande précision la distribution en mobilités d'un aérosol (Knutson et Whitby, 1975b) dans un domaine de dimensions compris entre quelques nanomètres (Hussin *et al.*, 1983) et environ 2 micromètres (Le Bronnec, 1998). Ces analyseurs ont de nombreuses applications en métrologie des aérosols. Citons par exemple, la génération d'aérosols monodispersés submicroniques (Liu et Pui, 1974b), la mesure de la distribution granulométrique d'un aérosol (Knutson, 1976) ou bien la mesure de la distribution des charges d'un aérosol (Liu et Pui, 1974c). Signalons également que l'association de deux analyseurs différentiels permet d'étudier les variations de dimension des particules (Rader et McMurry, 1986) ou bien de déterminer la densité de celles-ci (Le Bronnec *et al.*, 1999).

Dans le tableau 1.4 nous résumons les principaux avantages et inconvénients liés à l'utilisation des différents types d'analyseurs de mobilité électrique.

Tableau 1.4 - Avantages et inconvénients des différents analyseurs de mobilité électrique.

<b>Analyseurs</b>	<b>Avantages</b>	<b>Inconvénients</b>
<b>Ordre 0</b>	Facilité de mise en œuvre, surtout pour le dépôt de particules.	Mauvaise résolution pour l'analyse de la distribution des charges
	Analyse aisée de la fraction neutre et de la fraction chargée de l'aérosol.	Pas de distinction de la fraction positive et négative avec un compteur de particules.
<b>Ordre 1</b>	Facilité de mise en œuvre.	
	Bonne résolution pour l'analyse des dépôts de particules	Analyse fastidieuse des dépôts de particules.
	Analyse simultanée des fractions positives et négatives de l'aérosol en version dépôt.	Dilution de l'aérosol sélectionné en amont du compteur de particule (gênant pour l'analyse d'aérosols faiblement concentrés).
	Analyse distincte des fractions positives et négatives avec un compteur de particules.	Nécessite l'utilisation d'un aérosol parfaitement monodispersé.
	Analyse aisée de la fraction neutre avec un compteur de particules.	
	Interprétation facile de la réponse du compteur de particules.	
<b>Ordre 2</b>	Très bonne résolution.	
	Analyse distincte des fractions positives et négatives.	Nécessite une modification de l'écoulement aéraulique pour l'analyse de la fraction neutre.
	Pas de dilution de l'aérosol en amont du détecteur.	Interprétation des résultats bruts moins aisée que pour l'ordre 1.

#### VI.4. *Synthèse des résultats expérimentaux*

Dans le tableau 1.5 nous résumons les principales études réalisées sur la charge électrique des aérosols non radioactifs en milieu bipolaire. Nous privilégions volontairement les études concernant le domaine continu, car c'est dans ce cas que l'aérosol peut posséder des charges multiples et peut alors subir des effets électrostatiques importants.

Nous présentons les différentes études en fonction des aérosols analysés, des types de neutraliseurs utilisés et des paramètres de mesure de la charge de l'aérosol. De plus, nous mentionnons si des études conjointes ont été réalisées sur les propriétés des ions présents dans les différents neutraliseurs employés.

Tableau 1.5 - Synthèse des différentes études sur la charge électrique de aérosol en milieu bipolaire.

Auteurs	Caractéristiques de l'aérosol	Type de neutraliseur	Paramètre de mesure de la charge	Mesure des propriétés des ions	Résultats et conclusions
Woessner et Gunn (1956).	Gouttes d'eau polydispersé 2-4 $\mu$ m.	Rayon X.	Distribution des charges, cellule d'observation.	Non	Distribution gaussienne, charge moyenne neutre. Statistique faible, présence d'impuretés ?.
Gunn et Woessner (1956).	Goutte d'eau 8 $\mu$ m.	Rayon X.	Distribution des charges, cellule d'observation	Mesure du paramètre d'asymétrie.	Bon accord avec la théorie de Gunn (1955), statistique de comptage faible.
John et Davis (1974)	Latex monodispersé 0,36 $\mu$ m	1 mCi <sup>85</sup> Kr	Distribution des charges. Analyseur d'ordre 0, analyse confondue des fractions positives et négatives	Non	Bon accord avec Boltzmann,
Liu et Piu (1974c)	DOP monodispersé 0,55 et 1,17 $\mu$ m	2 mCi <sup>85</sup> Kr	Distribution des charges, ADME cylindrique.	Concentration > 10 <sup>6</sup> cm <sup>-3</sup>	Ecart type en accord avec Boltzmann, charge moyenne légèrement négative.
Zamorani <i>et al.</i> (1978)	Latex monodispersé 0,8 $\mu$ m	Effet couronne alternatif	Distribution des charges. Dépôt dans un analyseur d'ordre 1	Courant d'ions global produit par l'effet couronne ( $i_+ + i_-$ )	La charge dépend de $i_+ + i_-$ , approche l'équilibre de Boltzmann pour $i_+ + i_- = 0$ .
Fjeld <i>et al.</i> (1981)	Aérosol monodispersé 0,3 – 1,1 $\mu$ m	2 sources <sup>241</sup> Am + champ électrique	Charge moyenne	Courant d'ions positifs et négatifs en dehors de la zone de charge	La charge dépend des courant d'ions et du champ électrique
Porstendörfer <i>et al.</i> (1984)	DEHS monodispersé 0,5 – 2 $\mu$ m	6 mCi <sup>241</sup> Am 0,75 mCi <sup>14</sup> C	Distribution des charges ADME plan	Estimation de $n_+/n_-$	Faible différence avec la théorie de Gunn.
Adachi <i>et al.</i> (1989)	DOP momodispersé 0,1 $\mu$ m	<sup>241</sup> Am	Distribution des charges. Cellule d'observation	Concentration $n_-$ en fonction de la concentration aérosol.	Efficacité de neutralisation faible pour les aérosols fortement concentrés
Adachi <i>et al.</i> (1993)	Aérosol monodispersé 0,98 $\mu$ m	2 effets couronnes continus	Distribution des charges. Cellule d'observation	Mesure des courants $i_+$ et $i_-$ en dehors de la zone de charge.	La charge dépend de $i_+/i_-$ , faible différence avec Boltzmann pour $i_+/i_- = 1$ .

## VI.5. Conclusion

Nous avons vu qu'il existe de nombreuses études expérimentales sur la charge électrique des aérosols en milieu bipolaire. Ces études montrent généralement que la distribution des charges d'un aérosol peut être représentée par une loi normale. Néanmoins, on constate souvent un décalage de cette distribution vers des valeurs négatives, ceci par rapport à la loi d'équilibre de Boltzmann qui est communément employée. En s'appuyant sur les différentes théories existantes, les résultats expérimentaux sont habituellement interprétés à partir des différences de mobilités des ions positifs et négatifs. Toutefois, ces interprétations restent qualitatives.

Quelques études montrent qu'il est possible d'influer sur l'état de charge d'un aérosol en maîtrisant la production des ions. Ces études proposent l'utilisation de dispositifs à effet couronne ou bien utilisant des sources radioactives, qui permettent de contrôler de façon indépendante les concentrations en ions positifs et négatifs ; il est alors possible d'ajuster les productions des ions bipolaires afin d'obtenir l'équilibre de Boltzmann. Cependant, les mesures réalisées sur les ions et permettant de vérifier leur production, sont généralement effectuées en dehors de la zone de mélange avec l'aérosol (zone de neutralisation). En conséquence, la corrélation entre la loi de charge de l'aérosol et les propriétés électriques du milieu n'est pas parfaite, car les conductibilités des ions positifs et négatifs peuvent évoluer entre la zone de production et la zone de mélange.

En définitive, seule l'étude réalisée par Gunn et Woessner (1956) montre le lien entre la mesure de la distribution des charges d'un aérosol et le rapport des conductibilités électriques positives et négatives. Toutefois, leurs expériences ont été limitées par les conditions opérationnelles de l'époque. En effet, la technique de mesure employée est fastidieuse et le nombre de particules analysées s'en trouve limité. De plus, l'intensité d'ionisation mise en œuvre dans les expériences est faible.

De notre étude bibliographique, nous pouvons donc déduire que la validation des théories sur la distribution des charges des aérosols nécessite la réalisation simultanée de deux types de mesure. D'une part, la mesure des ions positifs et négatifs, notamment le paramètre d'asymétrie, d'autre part, la mesure de la charge électrique de l'aérosol. Afin d'être exploitable, ces mesures doivent être réalisées avec une bonne maîtrise des différents paramètres expérimentaux tel que la monodispersion de l'aérosol ou bien la production des ions.

## VII. Théorie de la charge électrique des aérosols radioactifs

### VII.1. *Introduction*

Il existe dans la littérature plusieurs études théoriques permettant de déterminer l'état de charge d'un aérosol radioactif (Harrison, 1992). Ces études montrent que le processus de charge est sensiblement différent de celui des aérosols inactifs. Par ailleurs, quelques résultats expérimentaux ont déjà permis de montrer l'influence de la radioactivité de l'aérosol sur son état de charge électrique (Yeh *et al.*, 1976).

Nous connaissons l'importance des propriétés électriques d'un aérosol sur son comportement vis à vis des effets électrostatiques. C'est pourquoi, en raison de la nocivité des radioéléments tant au niveau de l'irradiation que de la contamination, il est essentiel de pouvoir déterminer avec précision la charge électrique des aérosols radioactifs et son influence sur l'évolution des particules. C'est pourquoi, différentes équipes de recherche se sont attachées à étudier les propriétés électriques des aérosols radioactifs depuis plusieurs années.

### VII.2. *Description du processus de charge électrique d'un aérosol radioactif*

#### VII.2.1. Introduction

Le processus de charge électrique d'un aérosol radioactif comporte deux aspects différents par rapport au processus de charge d'un aérosol inactif. Tout d'abord, l'aérosol radioactif est soumis à un mécanisme d'auto-chargement de ses particules lors de l'émission d'un électron bêta ou bien d'un noyau d'hélium alpha. De plus, contrairement aux aérosols inactifs, la production des ions bipolaires dépend de la radioactivité de l'aérosol. En conséquence, la distribution des charges de l'aérosol radioactif résulte de l'équilibre entre un terme d'auto-chargement et un terme de neutralisation.

L'auto-chargement est fonction de l'activité spécifique de l'aérosol tandis que la neutralisation est fonction de la mobilité ainsi que de la concentration des ions bipolaires produits par l'aérosol. Nous schématisons ces deux mécanismes sur la figure 1.15.

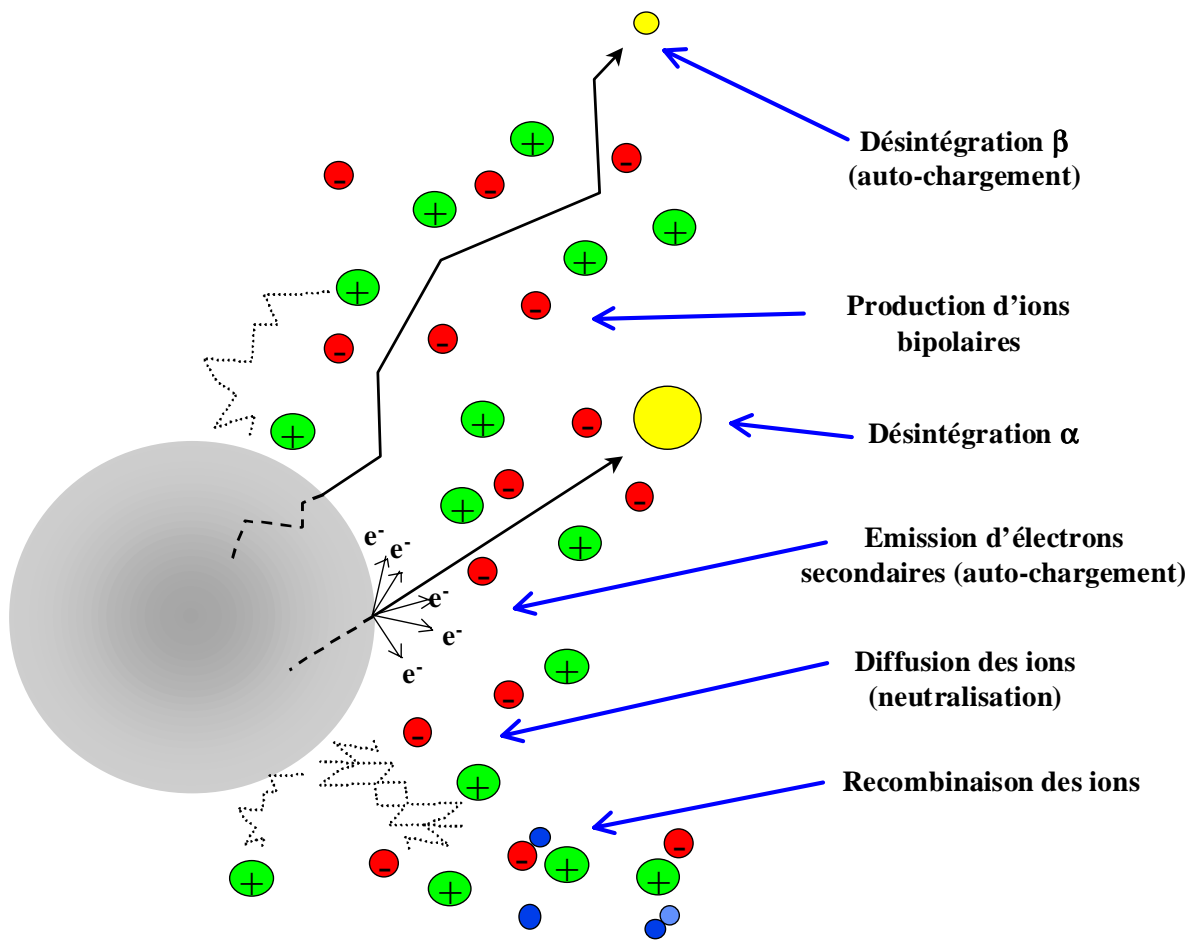


Figure 1.15 - Processus de chargement électrique d'un aérosol radioactif émetteur alpha ou bêta.

D'après la figure 1.15, nous pouvons déjà percevoir la complexité de ce processus. En effet, nous voyons d'une part, que les divers mécanismes participant à ce processus sont interdépendants, d'autre part, que ces mécanismes sont différents suivant la nature (alpha ou bêta) de la radioactivité de l'aérosol. Par exemple, le mécanisme d'auto-chargement des aérosols émetteurs alpha est sensiblement différent de celui des émetteurs bêta, de même, la production des ions bipolaires va dépendre de la nature du rayonnement et de la concentration de l'aérosol.

Détaillons les différents mécanismes intervenant dans ce processus.



## VII.2.2. L'auto-chargement des particules

- Les émetteurs bêta.

Afin de caractériser le taux d'auto-chargement ( $m$ ) d'un aérosol radioactif, nous utilisons l'activité spécifique des particules  $\eta$  ( $\text{Bq p.}^{-1}$ ) ainsi que le nombre de charges électriques ( $p$ ) résiduelles sur les particules lors d'une désintégration. L'activité spécifique des particules étant définie par le nombre moyen de désintégrations par unité de temps sur une particule.

Dans le cas des radioéléments émetteurs bêta, il est généralement admis que le nombre de charges élémentaires émises à chaque désintégration est égal à 1 (Ivanov et Kirichenko 1970, Yeh 1976), il correspond à l'éjection de l'électron. En conséquence, le taux d'auto-chargement de la particule est positif, et il est défini par la relation :

$$m = p \cdot \eta = +1 \cdot \eta, \quad (1.54)$$

où  $m$  représente le taux d'auto-chargement d'une particule (charges élémentaires/s),  $p$  le nombre de charges résiduelles à chaque désintégration et  $\eta$  l'activité spécifique de la particule ( $\text{Bq p.}^{-1}$ ).

Pour les aérosols émetteurs bêta, le taux d'auto-chargement est donc égal à l'activité spécifique des particules.

Lorsqu'un aérosol radioactif est produit de façon homogène à partir de matière contenant un élément radioactif, il est souvent commode d'exprimer l'activité spécifique en fonction de la dimension des particules. Nous obtenons ainsi la relation :

$$\eta = \frac{4}{3} \pi \cdot r_p^3 \cdot \rho_m \cdot A_s, \quad (1.55)$$

où  $\eta$  représente l'activité spécifique des particules ( $\text{Bq p.}^{-1}$ ) de rayon  $r_p$  (m),  $\rho_m$  la masse volumique ( $\text{kg m}^{-3}$ ) et  $A_s$  l'activité massique du matériau ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ).

- Les émetteurs alpha

Le mécanisme d'auto-chargement des aérosols radioactifs émetteurs alpha est plus complexe que celui des émetteurs bêta. En effet, lors de l'émission d'un noyau alpha ( $\text{He}^{2+}$ ) nous obtenons une charge résiduelle négative égale à  $-2e$  sur la particule. Cependant, le

noyau alpha (beaucoup plus lourd que l'électron bêta) peut arracher des électrons situés à la surface de la particule, au moment de son éjection.

Une étude réalisée par Ivanov *et al.* (1969) cite les travaux de Ehrenhaft (1925) qui a observé expérimentalement pour la première fois cette émission d'électrons secondaires. Dans leur étude, Ivanov *et al.* (1969) ont également réalisé des expériences permettant de déterminer l'auto-chargement d'un aérosol émetteur alpha ayant été activé par les descendants du radon.

Leurs résultats ont permis de montrer que le nombre d'électrons secondaires ( $\omega$ ) émis à chaque désintégration est très variable, ce nombre étant généralement compris entre 10 et 20 mais il peut atteindre 40 charges élémentaires. Les auteurs montrent ainsi, en tenant compte de la charge du noyau alpha, que le nombre de charges résiduelles est en moyenne de +12 charges élémentaires par désintégration ( $p=+12$ ).

Signalons que dans le cas de l'activation d'un aérosol par les descendants du radon l'émetteur alpha est principalement le  $^{218}\text{Po}$ . Celui-ci étant fixé sur la surface de la particule, il est possible d'observer un auto-chargement négatif lorsque le noyau alpha est émis sans traverser la particule (Ivanov *et al.* 1969, Clement et Harrison 1992), car il n'arrache pas d'électrons secondaires. Nous schématisons les deux possibilités d'auto-chargement d'un aérosol activé par du radon sur la figure 1.16.

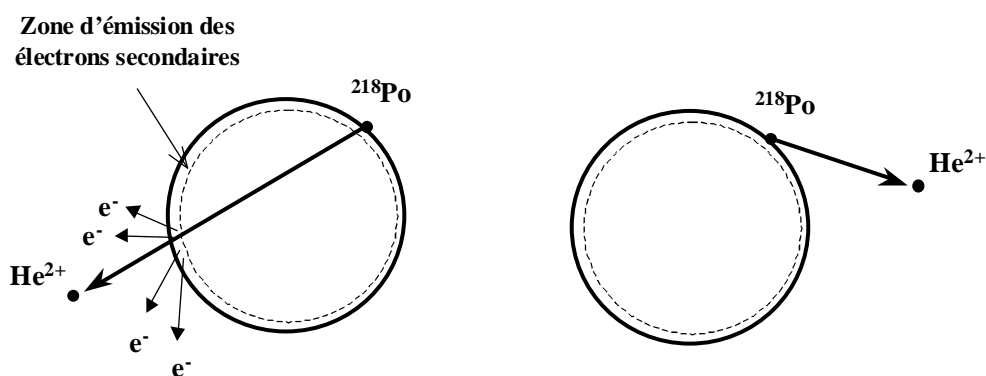


Figure 1.16 - Schéma du mécanisme d'auto-chargement des aérosols radioactifs activés par du radon.

Plus tard, Yeh *et al.* (1978) ont déduit un taux d'auto-chargement des particules émettrices alpha à partir de la mesure de la charge moyenne d'un aérosol d'oxyde de plutonium ( $^{238}\text{PuO}_2$ ). Ils montrent ainsi, en tenant compte de la charge du noyau alpha, que le nombre de charges résiduelles est environ égal à +9 charges élémentaires par désintégrations ( $p=+9$ ). Ce résultat est du même ordre de grandeur que les valeurs indiquées par Ivanov *et al.* en 1969.

- L'interaction avec le rayonnement gamma

Du fait de la pénétrabilité importante des photons dans la matière, les particules d'aérosols peuvent être soumises à un auto-chargement si l'aérosol est émetteur gamma ou bien s'il est exposé à un flux de photons issus d'une source d'irradiation externe.

Dans le cadre de notre thèse, nous nous intéressons à cet auto-chargement, afin de le quantifier dans le cas de l'interaction avec un rayonnement gamma de forte intensité. Pour cela, nous cherchons à exprimer un taux d'auto-chargement des particules soumises à un flux de photons. Exposons brièvement les principaux types d'interactions entre la matière et les photons pouvant conduire à l'auto-chargement d'une particule d'aérosol.

Il existe trois principaux types d'interactions entre un rayonnement de photons et la matière : l'effet photo-électrique, l'effet Compton, et la création de paires. Il peut se produire une interaction si le potentiel d'ionisation ( $w_i$ ) du matériau considéré est inférieur à l'énergie ( $h\nu$ ) des photons incidents ( $w_i < h\nu$ ). En conséquence, l'interaction d'un rayonnement de photons avec un aérosol peut se traduire par un auto-chargement des particules si l'énergie des photons est suffisante.

Nous pouvons distinguer deux mécanismes d'auto-chargement par émission d'un électron. D'une part, l'auto-chargement des particules par effet photo-électrique, d'autre part, l'auto-chargement des particules par effet Compton. Il existe des domaines de prépondérance pour chacune de ces interactions en fonction de l'énergie des photons et du numéro atomique de l'élément considéré.

L'effet photo électrique est prépondérant sur l'effet Compton lorsque les photons incidents ont une énergie faible ( $h\nu < 0,1 \text{ Mev}$ ) et lorsque les matériaux ont un numéro atomique supérieur à 20 (ce qui est le cas pour les métaux). Nous pouvons alors définir un nombre d'électrons émis par photon incident sur la particule en utilisant l'équation de Fowler-Nordheim (Cardona et Ley,

1978). Emets *et al.* (1993) ont proposé une expression de l'auto-chargement par effet photoélectrique permettant de déterminer la charge électrique d'un aérosol sous irradiation de photons.

Cet effet photoélectrique peut être utilisé en métrologie des aérosols pour caractériser la nature des aérosols nanométriques soumis à un rayonnement ultra violet (Burtscher *et al.* 1982, Fendel et Schmidt-Ott 1994). En effet, il existe des théories permettant de déterminer la composition des aérosols nanométriques en étudiant la charge électrique obtenue sous l'action d'un rayonnement ultra violet (Jung *et al.* 1988, Filippov *et al.* 1993, Mikhalkova et Poluektov 1996).

L'effet Compton est l'interaction prépondérante pour les photons dont l'énergie est comprise entre 0,8 et 4 Mev (Kaplan, 1963). Il est possible de déterminer un taux d'auto-chargement des particules par effet Compton en fonction de la densité de flux énergétique reçu par la particule, du coefficient massique de transfert d'énergie spécifique au matériau, de l'énergie moyenne des électrons Compton et de la dimension de la particule. Cependant, le calcul est compliqué, et nécessite la connaissance du spectre d'énergie des électrons Compton en fonction de l'énergie des photons incidents.

Néanmoins, nous pouvons établir une expression approchée de l'auto-chargement des particules sous irradiation de photons, en supposant que toute les interactions entre un photon et la particule entraînent l'émission d'un électron, donc un auto-chargement. Pour cela, nous utilisons le coefficient d'atténuation linéaire du photon dans la matière, il correspond à la distance moyenne parcourue par le photon entre deux interactions. Nous pouvons donc exprimer le taux d'auto-chargement de la particule en fonction de ce coefficient et du débit de fluence sur la particule. Nous obtenons ainsi l'expression (Gensdarmes *et al.*, 1998) :

$$m_\gamma = \phi_f \cdot \sigma_e \cdot \mu_m \cdot r_p , \quad (1.56)$$

où  $m_\gamma$  représente l'auto-chargement (charges élémentaires/s),  $\phi_f$  le débit de fluence (photons  $m^{-2} s^{-1}$ ),  $\sigma_e$  la section efficace de la particule ( $m^2$ ),  $\mu_m$  le coefficient d'atténuation linéaire ( $m^{-1}$ ) dans le matériau et  $r_p$  le rayon de la particule (m).

Toutefois, l'auto-chargement par irradiation de photons est très inférieur à celui obtenu par les émissions alpha ou bêta (Emets *et al.* 1993, Gensdarmes *et al.* 1998).

### VII.2.3. Le taux de production des ions bipolaires dans le milieu

Rappelons que le taux d'ionisation du milieu détermine la concentration des ions bipolaires ainsi que la cinétique du processus de charge d'un aérosol. Dans le cas particulier des aérosols radioactifs, ce taux d'ionisation dépend des caractéristiques de l'aérosol, c'est à dire de la nature du rayonnement, de l'activité spécifique ainsi que de la concentration des particules.

- Les émetteurs bêta

Dans le cas de l'émission d'électrons bêta, le nombre de paires d'ions (I) créées dans le milieu s'exprime en fonction du maximum du spectre d'énergie des électrons et du potentiel d'ionisation de l'air (eq. 1.11 et 1.12). En utilisant ce paramètre, nous pouvons donc exprimer le taux de production des ions, en fonction de l'activité spécifique moyenne des particules et de la concentration de l'aérosol. Nous obtenons ainsi l'expression (Reed *et al.*, 1977) :

$$q = I \cdot \eta \cdot C_t , \quad (1.57)$$

où q représente le taux de production des ions (nombre de paires d'ions  $m^{-3} s^{-1}$ ), I le nombre moyen de paires d'ions produites par désintégration,  $\eta$  l'activité spécifique moyenne des particules ( $Bq p^{-1}$ ) et  $C_t$  la concentration totale de l'aérosol ( $m^{-3}$ ).

Si nous supposons que la recombinaison est le mécanisme principal de disparition des ions dans le milieu, nous pouvons exprimer la concentration stationnaire en ions de chaque signe par la relation :

$$n = \sqrt{\frac{I \cdot \eta \cdot C_t}{\alpha}} , \quad (1.58)$$

où n représente la concentration stationnaire en ions positifs ou négatifs ( $m^{-3}$ ) et  $\alpha$  le coefficient de recombinaison des ions ( $m^3 s^{-1}$ ).

- Les émetteurs alpha

Dans le cas des aérosols émetteurs alpha, nous pouvons utiliser la même expression que pour les émetteurs bêta. Toutefois, Clement et Harrison (1992) soulignent le fait qu'il faut tenir compte de l'énergie cédée par le noyau alpha à l'intérieur de la particule, pour les aérosols de grandes dimensions ( $d_p > 10 \mu\text{m}$ ). En effet, une partie non négligeable de l'énergie du rayonnement alpha peut être dissipée dans la particule, elle ne contribue donc pas à l'ionisation du gaz.

- Influence de la géométrie du milieu sur le taux de production

Lorsque la géométrie du milieu ne permet pas aux rayonnements d'effectuer leur parcours en entier, le taux d'ionisation se trouve limité. Ce phénomène est sensible dans les conduits d'échantillonnages, surtout pour les électrons bêta qui ont un parcours dans l'air beaucoup plus grand que les noyaux alpha. Yeh (1976) a estimé la production d'ions dans un conduit cylindrique en supposant, d'une part, que l'aérosol radioactif constitue une source linéaire située sur l'axe du cylindre, d'autre part, que le parcours moyen du rayonnement est égal au rayon du tube. L'auteur exprime alors le taux de production par la relation suivante :

$$q = \frac{I}{\delta} \cdot R \cdot \eta \cdot C_t , \quad (1.59)$$

où  $I$  représente le nombre de paires d'ions produite en milieu infini,  $\delta$  le parcours moyen du rayonnement en milieu infini et  $R$  le rayon du tube.

Plus récemment, Clement et Harrison (1992) ont montré que l'expression (1.59) sous estime le taux de production des ions. Ces auteurs proposent alors de calculer la distance moyenne entre l'axe du tube et un point arbitraire situé sur la surface de ce tube. Ils effectuent alors leur calcul en supposant que la distance axiale maximum du parcours est égale à environ 10 rayons. Nous schématisons leur représentation sur la figure 1.17.

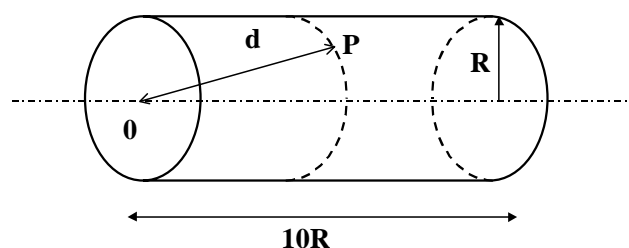


Figure 1.17 - Schéma du parcours moyen d'un rayonnement dans un tube.

Clement et Harrison (1992) montrent ainsi que le parcours moyen ( $\bar{d}$ ) d'un rayonnement (supposé rectiligne) dans un tube de rayon R peut être décrit par l'expression :

$$\bar{d} = \frac{\pi}{2} \cdot R. \quad (1.60)$$

### VII.3. Les équations d'évolution de la charge électrique d'un aérosol radioactif

#### VII.3.1. Introduction

De façon analogue aux théories de chargement électrique des aérosols non radioactifs, nous pouvons modéliser la charge des aérosols radioactifs en suivant deux approches. La première, consiste à supposer que toutes les particules possèdent la même charge moyenne  $\bar{J}$ , et nous décrivons alors l'équation d'évolution de cette charge moyenne. La deuxième, consiste à décrire l'évolution de chaque fraction de particules portant un nombre de charges élémentaires ( $j$ ) donné.

#### VII.3.2. Equation d'évolution de la charge moyenne de l'aérosol

- L'équation de Yeh (1976)

Par analogie avec l'étude de Liu et Pui (1974a) sur la neutralisation des aérosols, Yeh (1976) a modélisé l'évolution de la charge d'un aérosol radioactif en considérant les flux d'ions positifs et négatifs arrivant sur une particule de charge moyenne  $\bar{J}$ . Afin de prendre en compte l'auto-chargement des aérosols radioactifs, Yeh ajoute un taux d'auto-chargement des particules. L'équation 1.61 décrit alors l'évolution du nombre moyen de charges électriques de l'aérosol radioactif (Yeh, 1976).

$$\frac{dJ}{dt} = \beta_{1J} \cdot n_+ - \beta_{-1J} \cdot n_- + m, \quad (1.61)$$

où J représente le nombre moyen de charges électriques,  $\beta_{1J}$  et  $\beta_{-1J}$  les coefficients de fixation respectifs des petits ions positifs et négatifs sur des particules possédant un nombre

moyen de charges  $J$  ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ),  $n_+$  et  $n_-$  les concentrations respectives des ions positifs et négatifs ( $\text{m}^{-3}$ ) et  $m$  le taux d'auto-chargement moyen des particules (charges élémentaires/s).

Yeh a également déterminé une solution analytique de cette équation dans le régime continu en utilisant les coefficients de fixation définis par Gunn (1954), et en supposant que les concentrations ainsi que les mobilités des ions positifs et négatifs sont égales. L'auteur obtient ainsi la solution :

$$J(t) = \frac{m}{\kappa} + \left( J_0 - \frac{m}{\kappa} \right) \cdot \exp(-\kappa \cdot t) , \quad \text{avec } \kappa = 4\pi \cdot e \cdot \mu \cdot n / \epsilon_0 , \quad (1.62)$$

où  $J_0$  représente le nombre moyen de charges électriques initial de l'aérosol,  $m$  le taux d'auto-chargement,  $\mu$  la mobilité électrique des ions et  $n$  la concentration des ions.

- Les équations de Reed *et al.* (1977)

Reed *et al.* (1977), ont montré que l'étude de la cinétique du processus de charge impose la prise en compte de l'évolution des concentrations en ions positifs et négatifs dans le milieu. En effet, la cinétique de charge des aérosols radioactifs est différente de celle des aérosols non radioactifs, car l'établissement des concentrations stationnaires en ions dépend de l'activité et de la concentration de l'aérosol. Reed *et al.* proposent donc de coupler les équations d'évolution des concentrations ioniques avec celle du nombre moyen de charges électriques. Ils établissent ainsi le système d'équations :

$$\frac{dJ}{dt} = \beta_{IJ} \cdot n_+ - \beta_{-IJ} \cdot n_- + m , \quad (1.63)$$

$$\frac{dn_+}{dt} = I \cdot \eta \cdot C_t - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- - \beta_{IJ} \cdot n_+ \cdot C_t , \quad (1.64)$$

$$\frac{dn_-}{dt} = I \cdot \eta \cdot C_t + \omega \cdot \eta \cdot C_t - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- - \beta_{-IJ} \cdot n_- \cdot C_t , \quad (1.65)$$

où  $I$  représente le nombre moyen de paires d'ions produites par désintégration,  $\eta$  l'activité spécifique moyenne des particules ( $\text{Bq p}^{-1}$ ),  $C_t$  la concentration totale de l'aérosol ( $\text{m}^{-3}$ ),  $\alpha$  le coefficient de recombinaison ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ) et  $\omega$  le nombre moyen d'électrons secondaires émis lors d'une désintégration.



Nous remarquons que l'équation d'évolution des ions négatifs comporte un terme source supplémentaire ( $\omega \cdot \eta \cdot C_t$ ), qui assimile l'émission d'électrons secondaires à une production d'ions négatifs. Dans le cas des émetteurs bêta, nous avons  $\omega=1$ , et ce terme est important seulement pour les aérosols fortement radioactifs ou pour les émetteurs alpha.

### VII.3.3. Equation d'évolution de la distribution des charges de l'aérosol

Clement et Harrison (1992) ont proposé une généralisation du système d'équations permettant de déterminer l'évolution de chaque fraction de particules portant un nombre de charges donné (eq. 1.36 à 1.38), incluant le cas des aérosols radioactifs. Pour définir rigoureusement l'évolution de la distribution des charges dans le cas des émetteurs alpha, ils introduisent dans leurs équations un terme d'auto-chargement qui est fonction de la probabilité d'observer un nombre  $\omega$  d'électrons secondaires émis lors d'une désintégration alpha. Les auteurs soulignent l'intérêt d'utiliser cette probabilité notamment, dans le cas d'un aérosol activé par du radon, car nous avons vu que le nombre d'électrons secondaires peut être nul. Toutefois, comme nous n'avons pas trouvé dans la littérature d'expression générale afin de décrire cette probabilité, nous présenterons uniquement le système d'équations en fonction du taux moyen d'auto-chargement des particules :

$$\frac{dC_j}{dt} = \beta_{1j-1} \cdot n_+ \cdot C_{j-1} + \beta_{-1j+1} \cdot n_- \cdot C_{j+1} - \beta_{1j} \cdot n_+ \cdot C_j - \beta_{-1j} \cdot n_- \cdot C_j + \eta \cdot C_{j-p} - \eta \cdot C_j, \quad (1.66)$$

$$\frac{dn_+}{dt} = q + I \cdot \eta \cdot C_t - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- - \sum_{j=-\infty}^{+\infty} \beta_{1j} \cdot n_+ \cdot C_j, \quad (1.67)$$

$$\frac{dn_-}{dt} = q + I \cdot \eta \cdot C_t + \omega \cdot \eta \cdot C_t - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- - \sum_{j=-\infty}^{+\infty} \beta_{-1j} \cdot n_- \cdot C_j, \quad (1.68)$$

où  $C_j$  représente la concentration de particules portant  $j$  charges élémentaires positives ou négatives ( $m^{-3}$ ),  $\beta_{1j-1}$  le coefficient de fixation d'un ion positif sur une particule portant  $j-1$  charges ( $m^3 s^{-1}$ ),  $\beta_{-1j+1}$  le coefficient de fixation d'un ion négatif sur une particule portant  $j+1$  charges ( $m^3 s^{-1}$ ),  $p$  le nombre moyen de charges résiduelles sur la particule à chaque désintégration,  $\omega$  le nombre moyen d'électrons secondaires émis à chaque désintégration,  $q$  un

taux d'ionisation supplémentaire pouvant provenir d'une source d'irradiation, et  $C_t$  la concentration totale de l'aérosol ( $C_t = \sum_j C_j$ ).

Dans le cas des aérosols radioactifs émetteurs alpha, nous avons la relation  $p=\omega-2$ . En revanche, dans le cas des aérosols émetteurs bêta, nous avons  $p=\omega=1$  puisque seul l'électron bêta contribue à l'auto-chargement de la particule.

Comme pour les aérosols non radioactifs, il n'existe pas de solution analytique des systèmes d'équations définis précédemment en fonction du temps. Il faut alors utiliser des méthodes numériques. La résolution numérique de ces systèmes a été effectuée par Reed *et al.* (1977) ainsi que par Clement et Harrison (1992) pour déterminer respectivement l'évolution de la charge moyenne et la distribution des charges de l'aérosol. Leurs résultats montrent que la charge ainsi que les concentrations en ions bipolaires atteignent un état stationnaire.

#### VII.4. *La distribution stationnaire des charges électriques des aérosols radioactifs*

De façon analogue aux aérosols non radioactifs, nous pouvons définir une solution stationnaire de la charge moyenne portée par l'aérosol. Pour cela nous utilisons les coefficients de fixation en régime continu défini par Gunn (1954). Cependant, Clement et Harrison (1992) montrent qu'on ne peut pas établir une solution analytique simple pour déterminer exactement la distribution des charges des aérosols radioactifs.

##### VII.4.1. Solutions stationnaires établies par Yeh (1976) et par Reed *et al.* (1977)

En supposant que les concentrations et les mobilités des ions bipolaires sont égales, Yeh (1976) a montré que la charge moyenne à l'état stationnaire peut s'exprimer à l'aide de la relation :

$$J_\infty = \frac{m}{\kappa}, \text{ avec } \kappa = 4\pi \cdot e \cdot \mu \cdot n / \epsilon_0, \text{ et } m = p \cdot \eta, \quad (1.69)$$

où  $m$  représente le taux d'auto-chargement des particules (charges élémentaires / s),  $p$  le nombre de charges résiduelles par désintégration,  $\eta$  l'activité spécifique des particules ( $\text{Bq p}^{-1}$ ),  $\mu = \mu_+ = \mu_-$  la mobilité des ions ( $\text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ) et  $n = n_+ = n_-$  la concentration des ions ( $\text{m}^{-3}$ ).

Plus tard, Reed *et al.* (1977) ont établi la solution suivante pour leur système d'équations, toujours en supposant  $\mu = \mu_+ = \mu_-$  et  $n_+ \cong n_-$  :

$$J_\infty \cong \frac{\varepsilon_0 \cdot p}{4\pi \cdot e \cdot \mu} \cdot \sqrt{\frac{\alpha \cdot \eta}{I \cdot C_t}} \quad \text{et} \quad n_\infty \cong \sqrt{\frac{I \cdot \eta \cdot C_t}{\alpha}}, \quad (1.70)$$

Nous remarquons que le nombre moyen de charges obtenu est équivalent à l'expression de Yeh (1976) et que la concentration en ions est déterminée par la recombinaison.

#### VII.4.2. Solution stationnaire de Clement et Harrison (1992)

Par la suite, Clement et Harrison (1992) ont déterminé une expression du nombre moyen de charges dans un cas plus général, c'est à dire en supposant  $n_+ \neq n_-$  et  $\mu_+ \neq \mu_-$ . Les auteurs ont établi cette expression à partir de l'équation de Reed *et al.* (1.63) en fonction de 3 paramètres adimensionnels (X, y et  $\lambda$ ).

$$J = \frac{1}{2 \cdot \lambda} \cdot \ln \left( 1 + \frac{X-1}{1-p \cdot y/J} \right), \quad (1.71)$$

$$\text{où } X = \frac{\mu_+ \cdot n_+}{\mu_- \cdot n_-}, \quad y = \frac{\eta \cdot \varepsilon_0}{e \cdot \mu_- \cdot n_-}, \quad \lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \varepsilon_0 \cdot r_p \cdot k \cdot T} \quad \text{et } p \text{ représentent respectivement,}$$

le paramètre d'asymétrie des ions bipolaires, le paramètre de charge, le paramètre électrostatique et le nombre de charges résiduelles par désintégrations radioactives.

Nous remarquons que l'équation précédente ne donnant pas directement la charge moyenne de l'aérosol, doit donc être utilisée avec une méthode itérative. Néanmoins, les auteurs proposent deux solutions approchées pour déterminer directement la charge moyenne dans le cas des aérosols émetteurs bêta :

$$J = y \cdot \left( 1 - \frac{X-1}{\exp(2 \cdot \lambda \cdot y) - 1} \right)^{-1}, \quad \text{pour } \lambda \cdot y > 0,22, \quad (1.72)$$

$$J = y + \frac{X-1}{2 \cdot \lambda}, \quad \text{pour } \lambda \cdot y \leq 0,22.$$

Les auteurs déterminent aussi les concentrations en ions positifs et négatifs à l'état stationnaire :

$$n_{\pm} = \frac{\beta_{\pm 1J}}{2 \cdot \alpha} \cdot \left( \Lambda(J) - C_t \pm \frac{\alpha \cdot p \cdot \eta}{\beta_{1J} \cdot \beta_{-1J}} \right), \text{ avec} \quad (1.73)$$

$$\Lambda(J) = \left[ \left( C_t + \frac{\alpha \cdot p \cdot \eta}{\beta_{1J} \cdot \beta_{-1J}} \right)^2 + \frac{4 \cdot \alpha}{\beta_{1J} \cdot \beta_{-1J}} \cdot (q + I \cdot \eta \cdot C_t) \right]^{\frac{1}{2}},$$

Harrison (1992) a montré, dans le cas des aérosols émetteurs bêta, que la différence entre la solution déterminée par itération en utilisant les équations 1.71 et 1.73 et la charge moyenne obtenue par résolution numérique du système d'équations (1.66 à 1.68) est très faible (inférieure à 1%).

Harrison a également comparé la charge moyenne obtenue à l'état stationnaire en résolvant numériquement les équations de Reed *et al.* pour  $\mu_+ = \mu_-$  et la charge moyenne obtenue par itération en utilisant les équations 1.71 et 1.73. Il montre ainsi que les équations de Reed *et al.* entraînent une surestimation d'environ 10 % de la charge moyenne à l'état stationnaire.

Finalement, Clement *et al.* (1995) ont montré qu'on peut représenter la distribution des charges d'un aérosol radioactif émetteur bêta par une gaussienne dont la moyenne (J) est définie par l'équation 1.72 et dont l'écart type  $\sigma$  est défini par la relation :

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{2 \cdot \lambda} + y}. \quad (1.74)$$

Pour cela, les auteurs ont comparé pour différents aérosols émetteurs bêta, les distributions des charges stationnaires obtenues numériquement à l'aide des équations 1.66 à 1.68, avec une gaussienne définie par les paramètres présentés ci-dessus. Leurs résultats montrent que la charge moyenne est très bien représentée par l'équation 1.72 pour des

particules de diamètres compris entre 0,2 µm et 6 µm. En revanche, l'écart type de la distribution est bien représenté par la relation 1.74 seulement pour les particules de diamètres inférieurs à 1,6 µm, tandis que pour les particules de diamètres supérieurs à 3 µm, la relation 1.74 surestime d'environ 10 % l'écart type déterminé numériquement.

Kascheev *et al.* (1991) puis Emets *et al.* (1993) ont également étudié théoriquement le processus de charge des aérosols radioactifs. Afin de déterminer la charge moyenne ainsi que la distribution des charges à l'état stationnaire, ils fondent leur raisonnement sur une approche statistique et utilisent une probabilité de changement de l'état de charge des particules. Ces auteurs ont ainsi montré, dans le cas des aérosols émetteurs bêta fortement radioactifs, d'une part que la charge moyenne est indépendante de la dimension de l'aérosol, d'autre part, que la distribution des charges peut être représentée par une loi de Poisson. La charge la plus probable des particules est alors définie par la relation :

$$J = \frac{\epsilon_0 \cdot P \cdot \eta}{4\pi \cdot e \cdot \mu_- \cdot n_-} , \text{ pour } 2 \cdot \lambda \cdot J \gg 1 \quad (1.75)$$

Nous pouvons remarquer que cette expression donnant la charge la plus probable est équivalente à la relation 1.69, définie par Yeh (1976) exprimant le nombre moyen de charges.

#### VII.4.3. Durée de mise à l'état stationnaire

Clement et Harrison (1992) ont proposé la relation suivante pour déterminer l'échelle de temps caractéristique du processus de charge des aérosols radioactifs émetteurs bêta.

$$\tau = \frac{y}{\eta} = \frac{\epsilon_0}{e \cdot \mu_- \cdot n_-} \cong \frac{\epsilon_0}{e \cdot \mu_-} \cdot \sqrt{\frac{\alpha}{I \cdot \eta \cdot C_t}} \quad (1.76)$$

Nous remarquons que cette échelle de temps dépend principalement de la concentration en ions négatifs dans le milieu. Lorsque la recombinaison domine le processus de disparition des ions, nous obtenons alors une relation simple à exploiter en fonction de l'activité spécifique des particules. Nous avons comparé l'expression précédente avec les résultats de calculs numériques effectués par Harrison (1992) sur l'évolution de la charge

moyenne d'aérosols radioactifs émetteurs bêta, ces aérosols ayant des activités spécifiques comprises entre  $0,077 \text{ Bq p}^{-1}$  et  $0,47 \text{ Bq p}^{-1}$  et un diamètre égal à  $0,53 \mu\text{m}$ . Les résultats numériques montrent que la charge moyenne stationnaire est atteinte pour un temps égal à environ  $50 \times \tau$ , ceci pour des particules initialement neutres. Cependant, nous constatons que la variation de la charge moyenne est inférieure à 10 % pour un temps supérieur  $18 \times \tau$ .

#### VII.4.4. Critère de chargement électrique d'un aérosol radioactif

Nous avons vu, d'après les équations précédentes, que le processus de charge d'un aérosol radioactif résulte de l'équilibre entre un mécanisme d'auto-chargement des particules et un mécanisme de neutralisation par diffusion des ions bipolaires créés dans le milieu. Etant donné que la concentration des ions bipolaires dépend de celle de l'aérosol et de son activité spécifique, il est possible d'établir un critère sur la concentration de l'aérosol ( $C_t$ ) afin de déterminer un domaine où l'auto-chargement sera prépondérant sur la neutralisation de l'aérosol.

Clement et Harrison (1991b) ont exprimé ce critère en supposant les concentrations en ions positifs et négatifs égales et déterminées par le mécanisme de recombinaison. Le critère pour obtenir une charge moyenne non négligeable s'exprime alors par la relation :

$$C_t \ll C_{cr} = \left( \frac{\epsilon_0}{e \cdot \mu_-} \right)^2 \cdot \frac{\alpha \cdot \eta}{I} \Rightarrow J \gg 1. \quad (1.77)$$

Nous représentons sur les figures 1.18 et 1.19 l'évolution de la charge moyenne d'un aérosol radioactif émetteur bêta contenant du  $^{137}\text{Cs}$ , respectivement en fonction de l'activité spécifique des particules puis en fonction de la concentration de l'aérosol. Pour cela, nous utilisons la relation 1.72, en supposant les concentrations des ions bipolaires égales et un rapport entre les mobilités positive et négative égal à 0,8, le diamètre des particules étant égal à  $1 \mu\text{m}$ .

Signalons que nous exprimons la charge électrique moyenne de l'aérosol en nombre de charges élémentaires ( $e$ ).

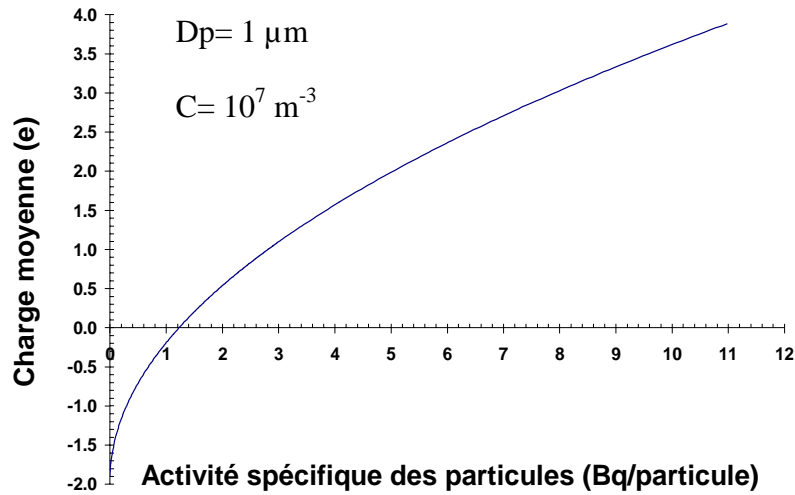


Figure 1.18 - Variation de la charge moyenne à l'état stationnaire en fonction de l'activité des particules.

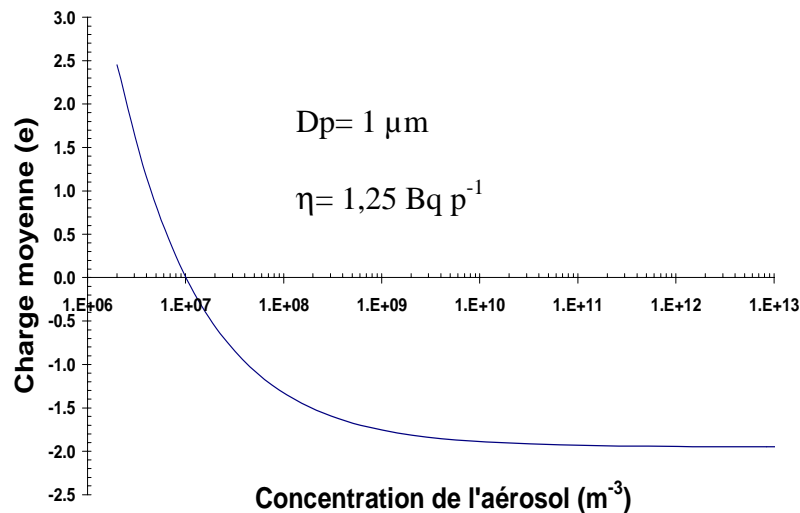


Figure 1.19 - Variation de la charge moyenne à l'état stationnaire en fonction de la concentration des particules.

Nous constatons d'après la figure 1.19, que lorsque la concentration de l'aérosol est supérieure à une concentration critique, que l'auto-chargement est négligeable et la charge moyenne résulte uniquement de la diffusion des ions positifs et négatifs sur les particules.

Nous représentons sur la figure 1.20 l'évolution de la charge moyenne en fonction du diamètre pour deux aérosols contenant en masse, respectivement 10 % de  $^{134}\text{Cs}$  ( $T=2,04$  ans) et 10 % de  $^{137}\text{Cs}$  ( $T=30,2$  ans). Pour cela, nous utilisons la relation 1.55, et supposons que la

densité des particules est égale à 2, le rapport entre les mobilités des ions positifs et négatifs étant égal à 0,8 et la concentration étant égale à  $10 \text{ cm}^{-3}$ . Nous pouvons constater qu'il existe un diamètre critique des particules pour lequel l'auto-chargement domine le mécanisme de neutralisation, ce diamètre est d'autant plus faible que la période de l'isotope est plus courte.

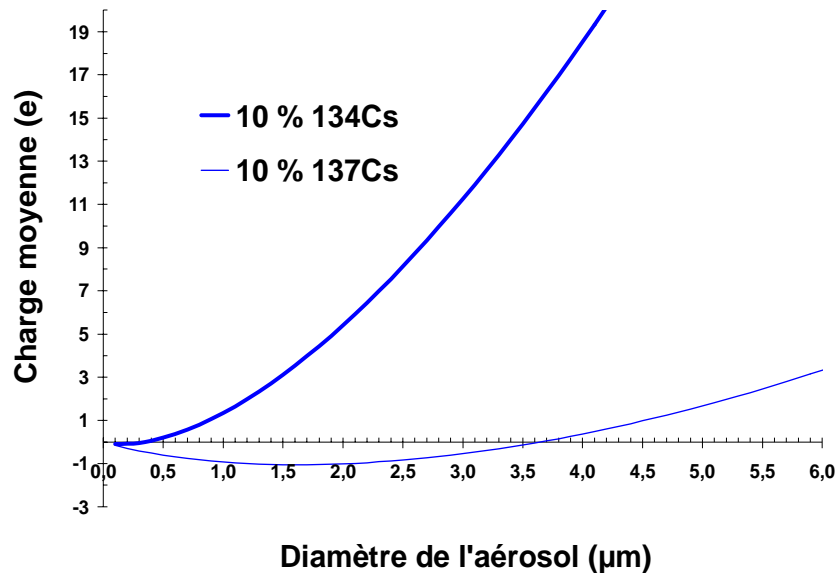


Figure 1.20 - Evolution de la charge moyenne en fonction du diamètre de l'aérosol.

## VIII. Résultats expérimentaux sur la mesure de la charge électrique des aérosols radioactifs

Contrairement aux aérosols inactifs, il existe peu de résultats expérimentaux sur la mesure de la charge électrique des aérosols radioactifs artificiels. Signalons que l'étude des propriétés électriques des aérosols radioactifs implique la maîtrise de systèmes de production, de contrôle et d'analyse en actif. Ces systèmes doivent être compatibles avec les impératifs de sécurité liés à la manipulation de matières radioactives contaminantes. C'est pourquoi, ces études sont difficiles à mettre en œuvre et ainsi, les résultats expérimentaux disponibles sont peu nombreux.

Nous pouvons noter que la plupart des résultats expérimentaux disponibles concernent les aérosols radioactifs émetteurs bêta. En effet, nous avons trouvé très peu d'études effectuées sur les émetteurs alpha, probablement du fait de leur radio-toxicité plus importante.



### VIII.1. *Les expériences sur les émetteurs bêta*

- Expériences réalisées par les équipes de recherche russes

Les premières études sur la charge électrique des aérosols radioactifs émetteurs bêta datent de la fin des années 1960. Ainsi Ivanov et Kirichenko (1970) ont décrit d'une part, une méthode de génération d'aérosols activés par un isotope radioactif de l'or ( $^{198}\text{Au}$ ), d'autre part un système d'analyse de la charge électrique composé d'un précipitateur électrostatique. Les résultats obtenus ont permis de montrer que la charge moyenne dépend de l'activité spécifique des particules.

Par la suite, Ivanov *et al.* (1972) ont étudié l'influence d'un aérosol polluant inactif sur la charge moyenne de l'aérosol radioactif, les auteurs ont ainsi montré que la charge moyenne augmente lorsque la concentration de l'aérosol polluant augmente. Ce résultat est dû à la diminution des concentrations en ions bipolaires par fixation sur l'aérosol polluant.

Plus tard, ces mêmes auteurs (Kirichenko et Ivanov 1970) ont étudié la charge des aérosols émetteurs bêta sous l'action d'un champ électrique alternatif. Leurs résultats ont montré que la charge moyenne des particules augmente avec le champ électrique ou l'activité spécifique des particules. L'étude expérimentale de la charge des aérosols radioactifs dans un champ électrique a été poursuivie par Berezhnoi *et al.* (1977a et 1977b) en utilisant une cellule de mesure de la charge électrique mieux adaptée aux conditions expérimentales.

Finalement, Ivanov *et al.* (1974) puis Berezhnoi *et al.* (1978) ont proposé une méthode permettant d'étudier la distribution des charges électriques d'un aérosol radioactif en présence d'un champ électrique puis d'en déduire la distribution des charges en l'absence de champ. Cependant, la méthode reste compliquée et le nombre de particules analysées est faible. Néanmoins, ces auteurs ont ainsi montré que la distribution des charges de l'aérosol radioactif suit une loi normale.

Nous pouvons également citer les travaux théoriques et expérimentaux de Kirichenko et Suprun (1974) puis ceux de Suprun *et al.* (1976) sur la charge électrique des aérosols radioactifs émetteurs bêta dans un écoulement aérodynamique turbulent. Leurs études permettent d'une part, d'établir un critère pour négliger la diffusion brownienne des ions, d'autre part, de montrer que la charge moyenne est plus importante lorsque l'écoulement est turbulent que lorsque qu'il est laminaire.

- L'étude de Yeh *et al.* (1976) sur la charge d'un aérosol de  $^{198}\text{Au}$

Deux études ont été réalisées par Yeh *et al.* en 1976 puis en 1978 à l'ITRI (Inhalation Toxicology Research Institute) à Albuquerque.

La première de ces études concerne la charge électrique d'un aérosol de  $^{198}\text{Au}$ , émetteur bêta. Le système de production de l'aérosol radioactif a été décrit par Newton *et al.* (1976), il permet d'obtenir des aérosols de diamètres aérodynamiques compris entre 0,6 et 3,5  $\mu\text{m}$  avec un écart type géométrique inférieur à 1,2. Le système d'analyse de la distribution des charges est constitué d'un condensateur plan à écoulement axial dans lequel sont réalisés des dépôts de particules en fonction de leur état de charge, ces dépôts sont ensuite analysés à l'aide d'un compteur proportionnel.

Yeh *et al.* (1976) ont ainsi déterminé la distribution des charges sur des aérosols radioactifs de diamètres égaux à 0,26 et 0,53  $\mu\text{m}$ , et d'activités spécifiques comprises entre 0,47 et  $1,6 \times 10^{-3} \text{ Bq p}^{-1}$ . Leurs résultats montrent que les distributions des charges sont décalées vers des valeurs positives par rapport à l'équilibre de Boltzmann, et ceci d'autant plus que l'activité spécifique des particules est importante. En revanche, dans le cas des faibles activités spécifiques (inférieures à 0,01  $\text{Bq p}^{-1}$ ), la charge moyenne de l'aérosol est quasiment nulle.

Ces expériences ont permis successivement à Yeh (1976), à Reed *et al.* (1977) puis à Clement et Harrison (1992) de tester leurs modèles théoriques respectifs, et ainsi de démontrer la cohérence de leurs équations. Cependant, les résultats disponibles ne permettent pas la validation des différents modèles, car il subsiste des incertitudes importantes sur les paramètres agissant sur la charge de l'aérosol radioactif.

En effet, les expériences réalisées ne comportent pas de mesure directe de l'activité spécifique des particules, cette activité étant déduite des paramètres de l'activation neutronique des particules et de la période du radioélément. De même, il n'y a pas de mesure directe de la concentration de l'aérosol analysé. Par ailleurs, les expériences ne donnent pas d'indications sur la pureté de l'aérosol étudié, car il ne faut pas oublier que la pulvérisation de la solution contenant les particules radioactives peut entraîner la production d'un aérosol inactif résidu. Finalement, ces expériences ne tiennent pas compte du temps nécessaire afin que l'aérosol radioactif atteigne un état de charge stationnaire, notamment pour les faibles activités spécifiques.

## VIII.2. Les expériences sur les émetteurs alpha

La première étude sur la charge électrique des aérosols émetteurs alpha a été réalisée par Ivanov *et al.* (1969). Cette étude a permis de montrer que l'auto-chargement de ces aérosols est différent de celui des émetteurs bêta, et résulte de l'émission d'électrons secondaires.

Par la suite Yeh *et al.* (1978) ont mesuré la distribution des charges électriques d'un aérosol monodispersé d'oxyde de plutonium ( $^{238}\text{PuO}_2$ ). Les auteurs ont utilisé le même système de mesure que pour l'étude de l'aérosol de  $^{198}\text{Au}$ . En revanche, le système de génération de l'aérosol est différent, il est décrit en détail par Raabe *et al.* (1975). La méthode consiste à produire un aérosol polydispersé de Plutonium puis à réaliser une oxydation thermique pour obtenir le  $\text{PuO}_2$ . L'aérosol est ensuite collecté sur des surfaces suivant le diamètre aérodynamique des particules à l'aide d'une centrifugeuse (Willeke et Baron, 1993). Les particules radioactives monodispersés sont ensuite incluses dans une solution puis dispersées à l'aide d'un pulvérisateur.

L'aérosol analysé par Yeh *et al.* (1978) a un diamètre égal à  $0,96\ \mu\text{m}$ , sa concentration est estimée à  $15\ \text{p cm}^{-3}$  et l'activité spécifique des particules est d'environ  $1,9\ \text{Bq p}^{-1}$ . Après l'étape de production, l'aérosol est neutralisé à l'aide d'une source de  $^{85}\text{Kr}$ , puis il est transporté jusqu'au système d'analyse. Les auteurs estiment que le temps de vieillissement après la neutralisation est compris entre 30 et 120 s. Les résultats montrent un auto-chargement positif de l'aérosol, la charge moyenne obtenue est égale à  $+2,8\ e$ . Toutefois, les auteurs signalent que l'incertitude sur la mesure est importante. En effet, l'écart type sur la valeur de la charge moyenne est égal à  $3,3\ e$ . A partir de ces résultats et de l'étude théorique effectuée par Yeh (1976), les auteurs déduisent un nombre de charges résiduelles sur les particules égal à 9 charges élémentaires par désintégration.

Par la suite, Clement et Harrison (1992) ont utilisé ces données pour tester leur modèle théorique. La charge moyenne stationnaire obtenue numériquement étant égale à  $4,1\ e$ , les auteurs en concluent que leur modèle est satisfaisant compte tenu des incertitudes sur les différents paramètres expérimentaux.

Au cours de la même étude, Yeh *et al.* (1978) ont déterminé la distribution des charges pour deux aérosols industriels polydispersés de PU-MOX (mélange d'oxydes de plutonium et d'uranium), les diamètres médians des aérosols étant respectivement égaux à  $0,46\ \mu\text{m}$  et

0,43  $\mu\text{m}$ , et les activités spécifiques respectivement  $3,4 \times 10^{-4} \text{ Bq p.}^{-1}$  et  $2,9 \times 10^{-4} \text{ Bq p.}^{-1}$ . Les résultats obtenus ne montrent pas d'auto-chargement de l'aérosol, les charges moyennes sont quasiment nulles, et les distributions des charges des aérosols sont très proches de l'équilibre de Boltzmann. Ces résultats sont attribués à la faible activité spécifique des particules.

### VIII.3. *Synthèse des résultats expérimentaux sur la charge électrique des aérosols radioactifs*

Dans le tableau 1.6 nous synthétisons les différentes expériences réalisées sur les aérosols émetteurs alpha et bêta par Yeh *et al.* (1976 et 1978). Nous représentons également les comparaisons effectuées avec les théories développées par différents auteurs (Yeh 1976, Reed *et al.* 1977, puis Clement et Harrison, 1992). Nous récapitulons les calculs théoriques pour un nombre de paires d'ions créées à chaque désintégrations  $I=65$  dans le cas des émetteurs bêta et  $I=1,5 \times 10^5$  pour les alpha. Les mobilités des ions positifs et négatifs utilisées dans les équations de Yeh et de Reed *et al.* sont égales et ont pour valeur  $\mu_+ = \mu_- = 1,2 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Les mobilités des ions positifs et négatifs utilisées pour le calcul des équations de Clement et Harrison (1992) sont respectivement  $\mu_+ = 1,14 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  et  $\mu_- = 1,25 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ .

Nous constatons d'après le tableau 1.6 que les différentes théories donnent des résultats cohérents avec le petit nombre de résultats expérimentaux disponibles. Néanmoins, il subsiste des écarts notables entre les différents travaux théoriques et les résultats expérimentaux. Nous pouvons remarquer que ces écarts sont plus importants pour les faibles activités, ce qui est probablement dû en partie au temps de mise à l'état stationnaire beaucoup plus long. Soulignons qu'il existe un défaut de connaissance des paramètres expérimentaux influant sur la charge électrique des aérosols radioactifs, d'une part, au niveau de la concentration ou de la pureté de l'aérosol, d'autre part, au niveau de l'intensité d'ionisation ou de la concentration des ions bipolaires.

Tableau 1.6 - Synthèse des principaux résultats expérimentaux sur la charge électrique des aérosols radioactifs.

Type d'aérosol	Diamètre ( $\mu\text{m}$ ) concentration ( $\text{p}/\text{cm}^3$ )	Activité spécifique ( $\text{Bq}/\text{p}$ )	Charge moyenne J (e)				Temps d'évolution de la charge (s)			
			Résultats expérimentaux (Yeh et al., 1976 et 1978)	Equation de Yeh (1976) ( $n_+ = n_-$ et $\mu_+ = \mu_-$ )	Equations de Reed <i>et al.</i> (1977) ( $\mu_+ = \mu_-$ )	Equations de Clement et Harrison (1992) ( $\mu_+ \neq \mu_-$ )	Temps d'évolution expérimental (s)	Temps caractéristique de l'évolution en géométrie infinie	Temps caractéristique de l'évolution pour la géométrie de l'échantillonnage	
Emetteurs $\beta$ (p=1)	15 $\text{p}/\text{cm}^3$	0,47	+9,0 ( $\sigma=7,5$ )	+12,8	+13,8	+12,2	$\approx 23$ s	2,2 s	27 s	
		0,53 $\mu\text{m}$	0,21	+5,2 ( $\sigma=5,2$ )	+8,6	+9,2		+8,0	3,3 s	41s
		0,077	+1,9 ( $\sigma=4,3$ )	+5,2	+5,6	+4,7		5,4 s	67 s	
		0,15	+4,3 ( $\sigma=3,0$ )						48 s	
		0,26 $\mu\text{m}$	0,035	+1,5 ( $\sigma=1,6$ )					$\approx 12$ s	100 s
	15 $\text{p}/\text{cm}^3$	0,004	+0,11 ( $\sigma=1,1$ )					295 s		
Emetteurs $\alpha$ (p=9)	15 $\text{p}/\text{cm}^3$	0,96 $\mu\text{m}$	1,92	+2,84 ( $\sigma=3,3$ )	$J_{\text{exp}}=J_{\text{théo}}$ $\Rightarrow p=9$	4,1	$\approx 30-120$ s	0,27 s		
		0,46 $\mu\text{m}$ ( $\sigma_g=1,64$ )	$3,4 \times 10^{-4}$	+0,065 ( $\sigma=2,3$ )	+0,004					
		0,43 $\mu\text{m}$ ( $\sigma_g=1,59$ )	$2,9 \times 10^{-4}$	-0,13 ( $\sigma=2,4$ )	+0,004					

## IX. Conclusions

Nous venons de présenter les différentes théories permettant de déterminer l'état de charge électrique d'un aérosol, radioactif ou non, par diffusion d'ions bipolaires. Nous avons montré que la modélisation de l'état de charge électrique des particules est différente selon la nature et le domaine de dimension de l'aérosol.

Dans le cas des aérosols non radioactifs, les différentes théories existantes permettent de montrer que la charge électrique moyenne ainsi que la distribution des charges dépend étroitement des propriétés des ions. En effet, nous avons pu constater, d'après les théories de Gunn (1955) ou de Clement et Harrison (1992), que le rapport d'asymétrie entre les conductibilités électriques des petits ions positifs et négatifs est un paramètre déterminant l'état de charge de l'aérosol.

Néanmoins, la loi d'équilibre de Boltzmann est communément employée pour décrire la distribution des charges électriques d'un aérosol en milieu bipolaire, probablement du fait de sa simplicité d'application. Cependant, plusieurs études expérimentales mettent en évidence un décalage entre la charge électrique de l'aérosol en milieu bipolaire et l'équilibre de Boltzmann.

Par ailleurs, plusieurs d'entre elles montrent l'importance de connaître avec précision, la distribution des charges d'un aérosol afin de modéliser correctement son évolution dans un milieu. Les applications sont nombreuses, par exemple, dans les études d'inhalation (Melandri *et al.*, 1983), pour l'échantillonnage, la filtration (Liebhaber *et al.*, 1994) ou bien pour la métrologie des aérosols (Houlaki, 1986).

Bien que les théories semblent maintenant bien établies, nous avons constaté, qu'il n'existe pas de validation complète des lois de charge intégrant notamment la mesure des propriétés des ions bipolaires. Par ailleurs, nous savons que les petits ions évoluent suivant les conditions d'ionisation. Par exemple, en cas d'une forte intensité d'ionisation, les réactions de radiolyse peuvent être plus complexes, et l'évolution des ions peut être plus rapide (Mohnen 1974, Chang 1983). C'est pourquoi nous proposons, dans nos expériences, d'étudier conjointement la charge électrique des aérosols et les propriétés des petits ions créés artificiellement par différentes sources d'irradiation.

En ce qui concerne les aérosols radioactifs artificiels, notre étude bibliographique montre qu'il existe plusieurs modèles permettant de déterminer leurs propriétés électriques. Nous avons vu que ces modèles se différencient principalement par les approximations effectuées sur les petits ions créés par la radioactivité de l'aérosol, le modèle le plus complet étant celui de Clement et Harrison (1992). Par ailleurs, nous avons montré que la radioactivité d'un aérosol peut modifier son état de charge électrique et donc son évolution, par l'intermédiaire de phénomènes électrostatiques. Les applications de ces effets se retrouvent d'une part, dans le cadre de la sûreté des réacteurs nucléaires pour modéliser le comportement des aérosols produits dans l'hypothèse d'une situation accidentelle conduisant au relâchement des produits de fission (Clement et Harrison, 1990), d'autre part, dans les études d'inhalation (Yeh *et al.*, 1978) afin de pouvoir estimer avec précision l'exposition et la contamination des individus suite à l'inhalation de substances radioactives.

Notre étude bibliographique montre également que le nombre d'études expérimentales disponibles sur les propriétés électriques des aérosols radioactifs est très restreint, et que leurs résultats ne permettent pas de valider de façon certaine les différents modèles. Il nous a donc paru indispensable de mettre au point un dispositif expérimental qui devrait nous permettre de maîtriser les paramètres influents sur la charge électrique des aérosols radioactifs et de mesurer avec le plus de précision possible leurs distributions des charges électriques.

## CHAPITRE II

### ETUDE EXPERIMENTALE DES PROPRIETES DES IONS EN MILIEU FORTEMENT IONISE

#### I. Présentation de l'étude expérimentale

##### I.1. Introduction

Il s'agit de mettre en œuvre une méthode de mesure du rapport d'asymétrie entre les conductibilités électriques des ions positifs et négatifs dans un milieu ionisé artificiellement par un rayonnement radioactif. Pour cela, nous réalisons un dispositif expérimental et nous étudions les caractéristiques des ions produits par un rayonnement alpha, puis nous adaptons notre système pour étudier un milieu fortement ionisé par une irradiation gamma. Nous pourrions ensuite coupler notre dispositif, avec un système de mesure de la charge électrique des aérosols, afin d'effectuer une corrélation entre les résultats.

##### I.2. Dispositif et méthode expérimentale

Pour mesurer le rapport entre les conductibilités électriques des ions positifs et négatifs dans un milieu ionisé, nous choisissons d'utiliser un condensateur cylindrique (analyseur de mobilité d'ordre 0) et d'appliquer la méthode de Gerdien décrite dans le chapitre 1. Rappelons que cette méthode permet de mesurer distinctement les conductibilités des ions positifs et négatifs, nous obtenons ainsi facilement le rapport d'asymétrie. Ce système de mesure nous permet également de déterminer les concentrations en ions de chaque signe. Par ailleurs, l'utilisation d'un condensateur cylindrique permet de conserver une géométrie constante entre la zone de production des ions et le système de mesure, et un aérosol peut facilement être échantillonné à travers le système.

Notre condensateur fonctionne avec une électrode de collection externe, cette configuration permet de réduire l'effet de la distorsion du champ électrique à l'extrémité de l'électrode centrale ("edge effect") sur la collection des ions (Tammet, 1967). De plus, le condensateur est protégé par une cage de Faraday, ce qui inhibe les phénomènes d'induction de charge.



Nous représentons sur la figure 2.1 une vue en coupe de notre condensateur. Les diamètres des électrodes interne ( $D_i$ ) et externe ( $D_e$ ) sont respectivement, 14 mm et 30 mm. La longueur de l'électrode interne ( $L$ ) est égale à 99 mm. La capacité d'un condensateur cylindrique étant définie par la relation  $c = 2\pi \cdot \epsilon_0 \cdot L / \ln(D_e/D_i)$ , nous obtenons pour notre condensateur une capacité  $c$  égale à  $7,22 \times 10^{-12}$  F.

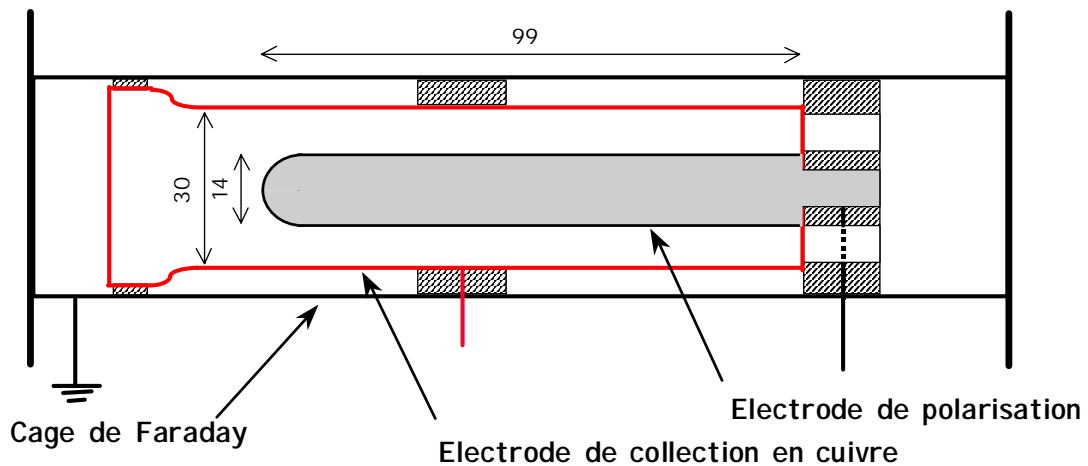


Figure 2.1 - Schéma du condensateur cylindrique.

Pour mesurer le courant d'ions obtenu sur l'électrode de collection, nous utilisons un électromètre Keithley (6517) de grande sensibilité. En effet, cet appareil permet de mesurer des courants de l'ordre de  $10^{-15}$  A, sa sensibilité étant inférieure à  $10^{-16}$  A. Par ailleurs, cet appareil incorpore également une source de tension stabilisée, ce qui nous permet d'appliquer la différence de potentiel entre l'électrode de polarisation et l'électrode de collection. Nous pouvons ainsi, à l'aide de ce seul appareil, faire varier facilement la tension entre les bornes du condensateur et mesurer le courant d'ions collecté sur l'électrode de mesure.

Nous représentons sur la figure 2.2 le montage expérimental que nous avons réalisé pour mesurer le rapport d'asymétrie entre les conductibilités des ions bipolaires. Dans ce cas les ions sont produits par 4 sources radioactives d'américium 241 émettrices alpha.

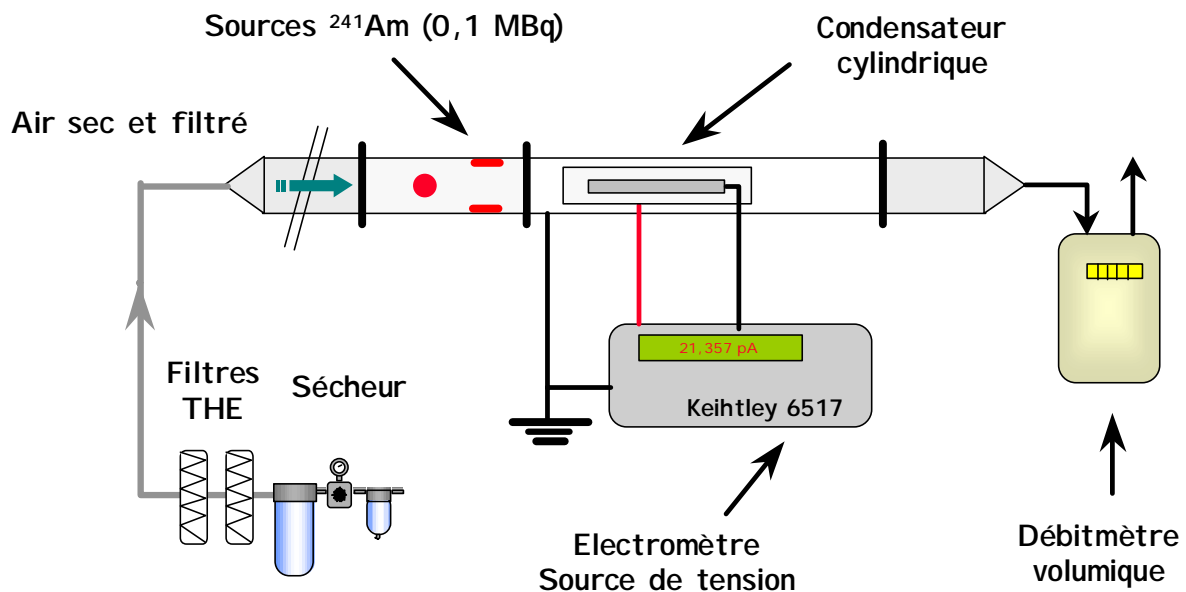


Figure 2.2 - Montage expérimental pour la mesure du paramètre d'asymétrie obtenu avec des ions produits par des sources émettrices alpha.

Notre dispositif expérimental est composé d'un conduit cylindrique en acier de 4 cm de diamètre, à l'intérieur duquel circule de l'air avec un débit fixé. Ce tube est divisé en plusieurs sections, les éléments constitutifs des différentes parties étant :

- une zone de "tranquillisation" de l'air injecté dans le conduit ( $\approx 1$  m),
- une zone d'ionisation où sont disposées les sources radioactives ( $\approx 6$  cm),
- une zone de mesure des ions (condensateur).

L'air utilisé dans nos expériences provient du réseau d'air comprimé desservant notre laboratoire. Cet air est déshuilé, séché à l'aide de gel de silice, puis filtré. Nous réalisons ponctuellement des mesures d'humidité relative et de température de l'air. Les valeurs enregistrées sont comprises entre 11 % et 17 % pour l'humidité relative et entre 19 °C et 22 °C pour la température. Par ailleurs, la perte de charge de l'ensemble du système étant négligeable, la pression dans le conduit est égale à la pression atmosphérique. Le système de

filtration de l'air est composé de 2 filtres THE disposés en série. Les filtres utilisés ont une efficacité de collection supérieure à 99,97 % (test DOP 0,3  $\mu\text{m}$ ) pour des débits inférieurs à 100 l/min.

Le débitmètre utilisé pour déterminer le débit volumique d'air est un compteur à gaz de type Gallus 2000, préalablement étalonné par nos soins à l'aide d'un banc de débitmètres massiques de références.

## II. Mesure des propriétés des ions produits par un rayonnement alpha

### II.1. *Caractéristiques de la source alpha*

- Géométrie du support de source et trajectoire des particules alpha

Dans notre dispositif, la zone d'ionisation est composée d'un tube métallique de 4 cm de diamètre qui sert de support à 4 sources d'américium 241. Les sources ont chacune une activité d'environ 25 kBq. Elles sont positionnées face à face dans le tube, de façon à créer une zone d'ionisation homogène (fig. 2.4).

Ces sources sont scellées par une couche de palladium dont l'épaisseur est d'environ 2  $\mu\text{m}$ . Du fait de son épaisseur, et du fort coefficient de transfert linéique d'énergie des noyaux alpha, la feuille de palladium absorbe une fraction non négligeable de l'énergie du rayonnement. Ce qui, bien entendu, diminue l'intensité d'ionisation dans l'air.

Par ailleurs, cette feuille entraîne également une légère dispersion du spectre d'émission monoénergétique des particules alpha. En effet, la principale émission alpha de l'américium 241 (85,2 %) a une énergie égale à 5,49 Mev, tandis que les particules alpha émergentes de la feuille de palladium ont une énergie moyenne égale à 4,25 Mev (Amersham QSA<sup>\*</sup>). Il nous faut donc tenir compte de ces effets pour calculer l'intensité d'ionisation théorique dans le milieu en fonction de l'activité des sources.

La couche de palladium entraîne également une dispersion angulaire du spectre d'énergie des noyaux alpha. La figure 2.3 empruntée à la société Amersham QSA, représente le spectre angulaire de l'énergie des particules alpha émises, l'angle étant pris par rapport à la normale de la surface.

\* Amersham QSA. Product specification, data sheet 11262.

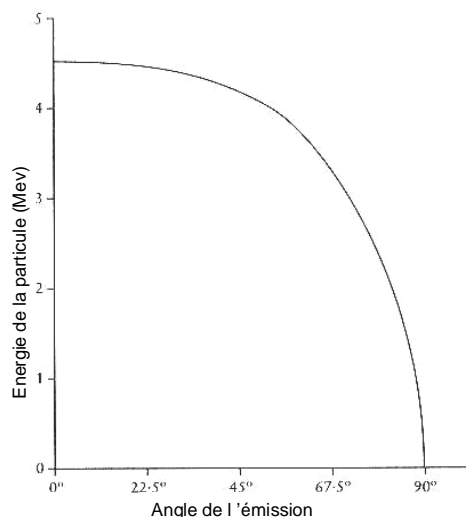


Figure 2.3 - Spectre angulaire de l'énergie des particules alpha émises par les sources d'américium 241.

Généralement, la zone d'ionisation d'une source alpha, supposée ponctuelle et déposée sur une surface est représentée par une demi sphère (Cooper et Reist, 1973). Cependant, en tenant compte de la dispersion angulaire de l'énergie des particules alpha représentée sur la figure 2.3, la zone d'ionisation peut être approchée par une sphère dont le diamètre correspond au parcours des particules alpha, ce parcours étant déduit de l'énergie moyenne des noyaux alpha traversant la feuille de palladium. Pour nos sources, dont l'énergie moyenne des émissions est  $E_i=4,25$  Mev, nous calculons un parcours égal à 2,7 cm en utilisant la relation 1.5.

En tenant compte des différentes remarques précédentes, nous représentons sur la figure 2.4, la géométrie de notre support de sources ainsi que la zone d'ionisation créée par les 4 sources d'américium 241.

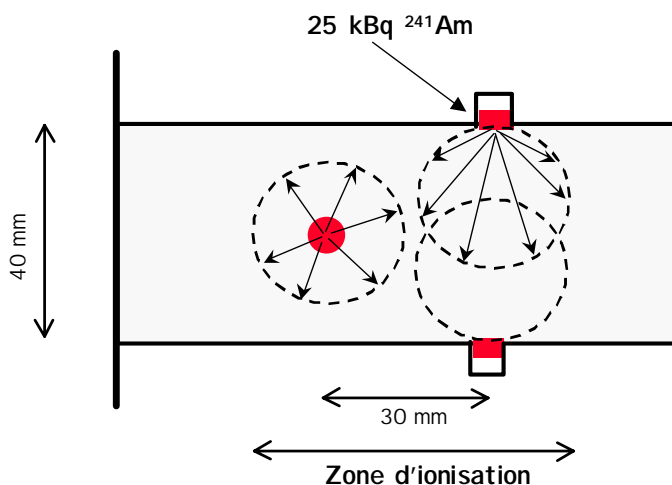


Figure 2.4 - Schéma du support de sources et de la zone d'ionisation.

- Intensité d'ionisation et concentration en ions à l'équilibre

En utilisant la relation 1.7, nous pouvons estimer le taux de production des ions dans la zone d'ionisation délimitée par les 4 sources. Pour cela, nous supposons que l'ionisation est homogène dans cette zone. Le volume ionisé, déterminé à partir de la section du tube et de la longueur de la zone ionisée (fig. 2.4) est d'environ  $72 \text{ cm}^3$ . L'activité totale des 4 sources étant  $0,1 \text{ MBq}$  et l'énergie moyenne des particules alpha étant égale à  $4,25 \text{ Mev}$ , nous obtenons ainsi un taux d'ionisation de  $1,69 \times 10^8 \text{ p.i. s}^{-1} \text{ cm}^{-3}$ .

Par ailleurs, nous pouvons calculer le débit de dose présent dans la zone d'ionisation en fonction de l'énergie du rayonnement émergent, de l'activité de la source radioactive et de la masse d'air ionisée. Nous obtenons ainsi un débit de dose égal à  $2,83 \text{ Gy/h}$ .

Si nous supposons que la recombinaison est le principal mécanisme de disparition des ions, nous pouvons alors utiliser l'équation 1.15 pour déterminer leur concentration stationnaire. Nous obtenons ainsi une concentration théorique égale à  $1,03 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$  dans la zone d'ionisation, ceci pour les ions de chaque signe.

Signalons que ce calcul ne prend pas en compte l'effet de dilution des ions par le flux d'air présent dans le conduit. Pour estimer cet effet, nous assimilons le volume d'ionisation à une zone de mélange homogène entre les ions et l'air filtré balayant le volume. Bien que l'écoulement dans le conduit s'apparente à un écoulement piston, notre hypothèse est justifiée par un taux de production des ions par unité de volume très supérieur au taux de renouvellement de l'air dans la zone d'ionisation. L'équation 2.1 décrit alors l'évolution de la concentration en ions de chaque signe ( $n$ ) dans la zone ionisée en fonction de leur taux de production ( $q$ ), de leur disparition par recombinaison et de leur dilution par apport d'air exempt d'ions, soit :

$$\frac{dn}{dt} = q - \alpha \cdot n^2 - \frac{Q_v}{v} \cdot n , \quad (2.1)$$

où  $Q_v$  représente le débit dans le conduit ( $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$ ),  $v$  le volume de la zone d'ionisation ( $\text{m}^3$ ) et  $\alpha$  le coefficient de recombinaison des ions ( $\alpha=1,6 \times 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , Bricard *et al.* 1965).

En résolvant l'équation 2.1 à l'état stationnaire ( $dn/dt=0$ ), nous obtenons une concentration stationnaire en ions de chaque signe égale à environ  $8,34 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$  pour un débit d'air de 30 l/min. Cette valeur correspond à une concentration environ 20 % plus faible que la concentration théorique obtenue en tenant compte uniquement de la recombinaison.

## II.2. Mesure du rapport d'asymétrie et des concentrations ioniques

L'interprétation théorique de nos résultats suppose que le régime de l'écoulement dans le condensateur est laminaire. Nous utilisons donc des débits pour lesquels le nombre de Reynolds ( $Re$ ) est inférieur à 2000 dans le conduit cylindrique ainsi que dans le condensateur. Pour calculer le nombre de Reynolds dans le condensateur, nous l'assimilons à un canal annulaire. Le nombre de Reynolds est alors défini en fonction des rayons  $R_i$  et  $R_e$  des électrodes interne et externe par la relation 2.2 (Kerouanton *et al.*, 1996).

$$Re = 2 \cdot (R_e - R_i) \cdot V / \nu, \quad (2.2)$$

où  $V$  représente la vitesse moyenne de l'écoulement ( $\text{m s}^{-1}$ ) et  $\nu$  la viscosité cinématique de l'air ( $\nu = 1,52 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  dans les conditions standards de pression et de température).

Les valeurs des nombres de Reynolds en fonction des débits utilisés sont indiquées dans le tableau 2.1.

Tableau 2.1- Nombre de Reynolds de l'écoulement  
pour les différents débits d'analyses.

Débit (l/min)	Reynolds dans le conduit	Reynolds dans le condensateur
14,4	497	451
41,9	1446	1313

Notre dispositif expérimental ne permet pas d'effectuer une mesure in situ du paramètre d'asymétrie et des concentrations ioniques dans la zone d'ionisation. En effet, bien que les systèmes de production et de mesure soit disposés en série, il existe un temps de transfert des ions vers le système de mesure. Afin de connaître l'influence de ce temps de transfert, nous effectuons des mesures pour plusieurs débits d'air dans le conduit. Signalons, par ailleurs, que la dose de rayonnement reçue par une "tranche" d'air dans le conduit dépend également du débit.

Sur les figures 2.5 et 2.6 nous représentons le courant (i) résultant de la collection des ions sur l'électrode de mesure en fonction de la différence de potentiel (U) appliquée entre les électrodes. Nos mesures sont réalisées pour des débits dans le condensateur égaux à 14,4 l/min et 41,9 l/min. Nous représentons également sur ces graphes les pentes des courbes relatives aux conductibilités des ions positifs et négatifs ainsi que leurs équations.

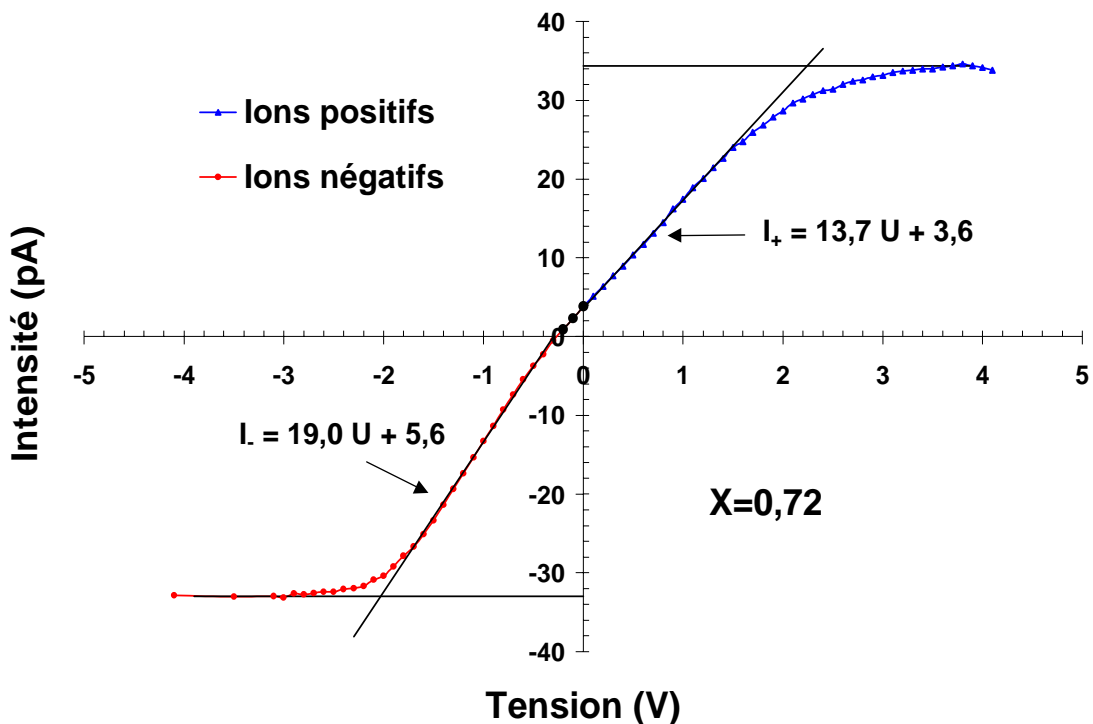


Figure 2.5 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit égal à 14,4 l/min.

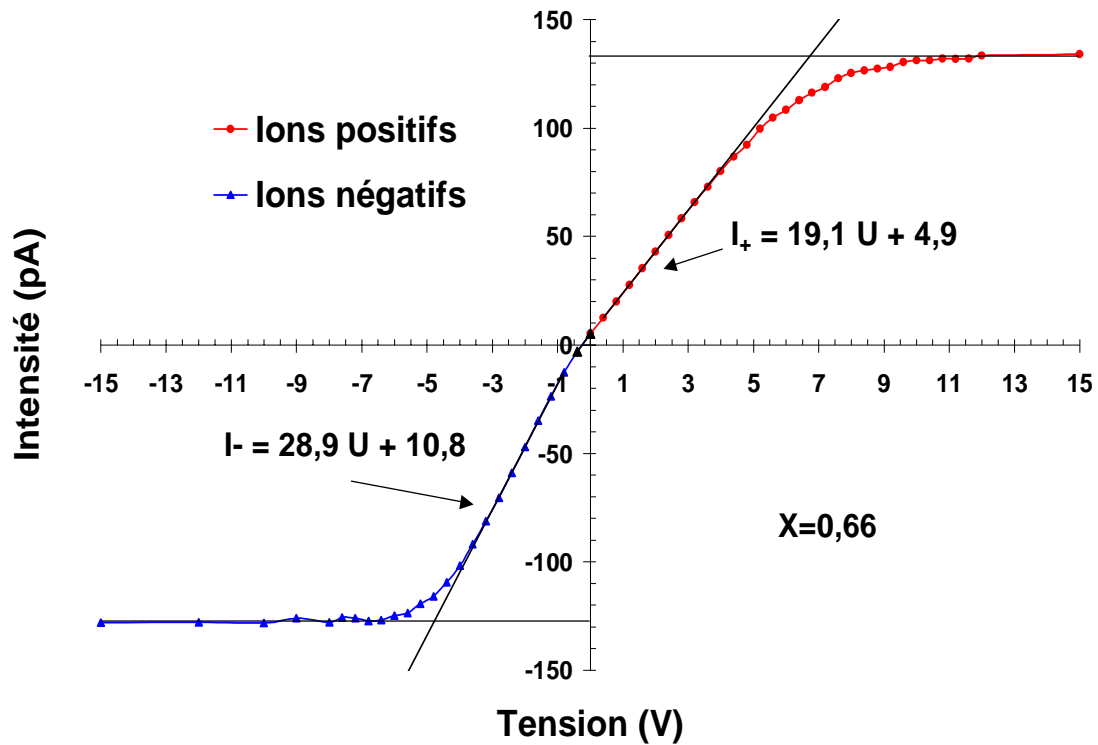


Figure 2.6 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit égal à 41,9 l/min.

Ces deux figures nous fournissent plusieurs informations sur les petits ions bipolaires. Tout d'abord, nous remarquons que les courbes respectives aux mesures des ions positifs et négatifs, possèdent, chacune, une seule pente. En conséquence, nous pouvons déduire que ces ions ont un spectre de mobilité discret, et de plus, qu'il existe une seule catégorie d'ions de chaque signe dans le milieu.

Néanmoins, nous observons une déviation de notre courbe expérimentale par rapport à la courbe théorique idéale (fig. 1.2). Cette déviation provient d'une part, du fait que les spectres de mobilité des ions positifs et négatifs ne sont pas parfaitement monodispersés, d'autre part, de l'effet de la diffusion des ions dans le système de mesure (Tammet, 1967).

Par ailleurs, nous remarquons que lorsqu'on applique une tension nulle entre les électrodes du condensateur, nous mesurons quand même un courant positif non négligeable. Ce courant résulte donc de la collection d'ions positifs sur l'électrode externe. Etant donné son signe et son intensité, il ne peut pas être imputé aux flux de diffusion des ions bipolaires. Il ne peut donc provenir que de la collection d'ions positifs sous l'action d'un champ électrique.



Ce champ électrique s'explique par la présence d'une charge d'espace résultant de la différence entre les concentrations des ions positifs et négatifs dans le milieu. Cette différence de concentration provient de la diffusion asymétrique des ions sur la paroi du conduit. En effet, les ions négatifs diffusant plus rapidement que les ions positifs, il existe alors une densité de charge plus importante au centre du conduit qu'au voisinage de la paroi. En conséquence, le champ électrique est dirigé de l'axe du conduit vers la paroi.

Nous vérifions facilement cette hypothèse en mesurant le courant de collection sur l'électrode interne du condensateur, nous obtenons alors un courant d'ions négatifs. Nous schématisons sur la figure 2.7, le champ induit par la charge d'espace dans le conduit cylindrique.

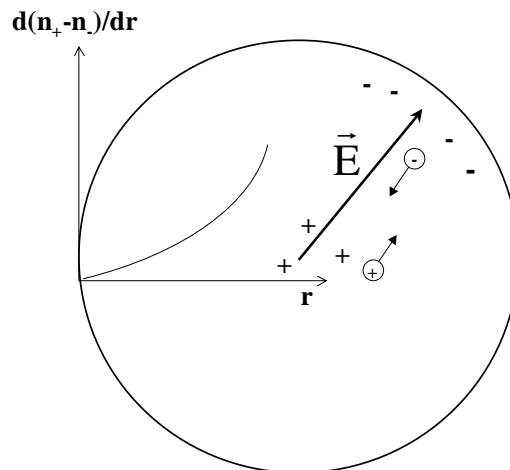


Figure 2.7 - Champ électrique créé par une charge d'espace dans un conduit cylindrique.

Nos courbes expérimentales représentées sur les figures 2.5 et 2.6 permettent de déterminer d'une part, les concentrations respectives en ions positifs et négatifs, d'autre part, le rapport entre les conductibilités des ions de chaque signe. Elles permettent également, sous certaines hypothèses, de déterminer les mobilités électriques des ions positifs et négatifs présents dans le milieu.

Détaillons l'obtention de ces différents paramètres.

- Détermination des concentrations ioniques

Nous déterminons les concentrations en ions positifs et négatifs à partir des courants de saturation respectivement positif et négatif, obtenus lorsque tous les ions entrant dans le condensateur sont collectés. Pour cela, nous utilisons la relation 1.23.

Lorsque le débit dans le conduit est égal à 14,4 l/min nous obtenons ainsi des concentrations en ions positifs et négatifs respectivement égales à  $8,98 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$  et  $8,59 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ . Lorsque le débit est égal à 41,9 l/min nous obtenons cette fois des concentrations en ions positifs et négatifs respectivement égales à  $1,19 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$  et  $1,15 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$ .

L'incertitude relative sur nos mesures est fonction d'une part, de l'incertitude sur le débit mesuré, d'autre part, de celle sur la mesure du courant. Nous avons estimé l'incertitude relative sur le débit à partir de séries de mesures successives, elle est d'environ 2 %. L'incertitude sur le courant, obtenue en effectuant la répétition d'une même mesure, est estimée à environ 1,5 %. En utilisant la loi de propagation des erreurs (Neuilly et CETAMA, 1998), nous pouvons donc déduire que l'incertitude relative sur les concentrations ioniques mesurées est inférieure à 3 %.

Compte tenu de ce résultat, nous pouvons déduire de nos expériences, d'une part que la concentration en ions positifs est supérieure à la concentration en ions négatifs, d'autre part que les concentrations obtenues pour un débit de 14,4 l/min sont inférieures à celles obtenues pour 41,9 l/min.

Cette différence entre les concentrations des ions positifs et négatifs est due à la diffusion asymétrique des ions. En effet, le terme puits déterminant la disparition des ions négatifs est plus important que celui des ions positifs.

La différence de concentration observée entre les expériences réalisées pour un débit égal à 14,4 l/min ou égal à 41,9 l/min est due à un temps de transfert plus court entre la zone d'ionisation et le système de mesure. En effet, la diminution du temps de transfert permet de réduire la perte d'ions par leur recombinaison et leur diffusion sur la paroi, et ainsi de se rapprocher de la concentration réelle dans la zone d'ionisation.

Par ailleurs, signalons que les mesures des concentrations peuvent être affectées par des effets inhérent au système de mesure (Tammet, 1967). En effet, cette mesure peut être biaisée par une perte d'ions par diffusion sur l'électrode de polarisation. Toutefois, nous estimons que cet effet est négligeable dans nos expériences compte tenu des débits d'analyses et des concentrations en ions. Ces mesures peuvent également être affectées par la distorsion du champ électrique à l'extrémité de l'électrode centrale ("edge effect"). Dans nos expériences, nous minimisons cet effet en utilisant une électrode de collection externe puis en isolant le condensateur dans une cage de Faraday.

- Détermination du paramètre d'asymétrie entre les ions positifs et négatifs

La conductibilité électrique des ions positifs ou négatifs est proportionnelle aux pentes respectives des courbes obtenues pour les ions de chaque signe (eq. 1.27). Le rapport des pentes nous permet donc d'obtenir directement le paramètre d'asymétrie défini par :  $X = \mu_+ \cdot n_+ / \mu_- \cdot n_-$ . Pour obtenir ces pentes, nous déterminons les équations des droites de régressions linéaires par la méthode des moindres carrés.

La régression linéaire est effectuée à partir des points ayant une abscisse inférieure de 50 % par rapport à l'abscisse correspondant à la collection totale des ions. De cette façon, nous ne prenons pas en compte les points résultant des conditions d'opérations non idéales du système. De plus, nous ignorons les points expérimentaux proches de l'origine, qui correspondent à la collection d'ions sous l'effet partiel du champ électrique créé par la charge d'espace.

Nous déterminons ainsi, un paramètre d'asymétrie égal à 0,72 lorsque la mesure est effectuée avec un débit de 14,4 l/min, puis un paramètre égal à 0,66 pour un débit de 41,9 l/min.

L'incertitude sur la valeur du paramètre d'asymétrie est évaluée à partir de l'incertitude relative sur la détermination des pentes, obtenues par les régressions linéaires des courbes. Nous supposons que cette incertitude est égale à l'incertitude relative sur la mesure des intensités, soit environ 1,5 %. En utilisant la loi de propagation des erreurs, nous estimons donc que l'incertitude relative sur la détermination du paramètre d'asymétrie est de 2,5 %.

En considérant ces incertitudes, nous pouvons donc déduire de nos résultats expérimentaux une variation du paramètre d'asymétrie suivant le débit d'analyse, et donc suivant le temps de résidence des ions dans la zone ionisée.

En fait, ce temps correspond à une dose reçue par la "tranche" d'air dans la zone ionisée. Par ailleurs, le débit d'analyse agit également sur le temps de transfert des ions entre la zone de production et la zone de mesure.

Nous synthétisons dans le tableau 2.2 nos résultats expérimentaux, obtenus pour trois débits différents. La dose reçue par une "tranche" d'air est estimée en fonction du débit de dose, de la vitesse moyenne de l'écoulement et de la longueur de la zone ionisée. Le temps de transfert des ions est estimé en fonction de la distance séparant la zone de production et le condensateur, soit environ 20 cm.

Tableau 2.2 - Mesures du paramètre d'asymétrie et des concentrations ioniques pour différents débits d'analyse.

Débit l/min	Dose reçue par une "tranche" d'air (Gy)	Temps de transfert (s)	Rapport d'asymétrie X	Concentration en ions positifs (cm <sup>-3</sup> )	Concentration en ions négatifs (cm <sup>-3</sup> )	Rapport n <sub>+</sub> /n <sub>-</sub>
14,4	2,4×10 <sup>-4</sup>	1,1	0,72	8,98×10 <sup>5</sup>	8,59×10 <sup>5</sup>	1,05
34,0	1,0×10 <sup>-4</sup>	0,5	0,67	1,12×10 <sup>6</sup>	1,08×10 <sup>6</sup>	1,04
41,9	7,9×10 <sup>-5</sup>	0,4	0,66	1,19×10 <sup>6</sup>	1,15×10 <sup>6</sup>	1,03

Nous interprétons la variation de la concentration en ions en fonction du débit d'analyse par leur recombinaison en fonction du temps de transfert. Signalons, par ailleurs, que la dilution des ions est plus importante lorsque le débit d'analyse augmente. Toutefois, cet effet agit dans une moindre mesure que la recombinaison. En effet, la variation de la concentration théorique pour des débits de dilution égaux à 14,4 l/min et 34,4 l/min est d'environ 10 %, tandis que la variation de la concentration théorique initiale due à la recombinaison pour des temps de transfert égaux à 1,1 s et 0,5 s est supérieure à 50 %.

Nous constatons par ailleurs une variation significative du paramètre d'asymétrie en fonction de la dose reçue et du temps de transfert des ions. Cette variation ne peut être expliquée par la faible variation du rapport des concentrations ioniques. Elle ne peut donc provenir que d'une variation du rapport entre les mobilités des ions positifs et négatifs. Afin de vérifier cette hypothèse, nous devons évaluer les mobilités électriques des petits ions présents dans le conduit à partir de nos courbes expérimentales.

- Détermination des mobilités électriques des ions

Rappelons que la mobilité électrique des ions peut être déterminée à partir de la tension critique définissant le champ électrique, au delà duquel tous les ions sont collectés dans le condensateur (fig. 1.2). Cependant, la tension appliquée aux bornes du condensateur ne définit pas la vraie valeur du champ électrique puisque nous avons mis en évidence l'existence d'une charge d'espace non négligeable, qui provoque une distorsion de ce champ électrique.

Seulement, la prise en compte de la charge d'espace dans la fonction de transfert du condensateur est complexe et conduit à des problèmes mathématiques non linéaires. Tammet (1967) décrit une approche du problème en supposant que la charge d'espace est uniforme et indépendante des conditions d'opérations du système. Toutefois, ces hypothèses n'étant pas justifiées, cette approche permet seulement d'estimer l'erreur commise en négligeant l'effet de la charge d'espace.

Habituellement, notre méthode de mesure est utilisée pour la détermination du spectre de mobilité des petits ions atmosphériques car, dans ce cas, la charge d'espace est généralement négligeable. Bien qu'elle soit mal adaptée pour déterminer exactement les mobilités des ions créés dans une atmosphère ionisée artificiellement, nous pouvons quand même estimer ces mobilités en tenant compte du champ électrique présent en l'absence de différence de potentiel entre les électrodes.

En effet, pour calculer les mobilités des petits ions positifs et négatifs d'après les figures 2.5 et 2.6, nous devons soustraire à la tension critique (eq. 1.22), la différence de potentiel permettant de compenser le champ électrique créé par la charge d'espace. Cette différence de potentiel correspond à la tension à appliquer sur l'électrode de polarisation afin d'obtenir un courant d'ions nul. Dans nos expériences cette tension est comprise entre -0,2 V et -0,4 V. En utilisant la relation 1.22 et en tenant compte du décalage de la tension

critique dû à la charge d'espace, nous pouvons alors calculer les mobilités des ions positifs et négatifs. Nous présentons nos résultats, obtenus pour trois débits différents, dans le tableau 2.3.

Tableau 2.3 - Mesure de la mobilité des ions positifs et négatifs pour différentes doses d'irradiation.

Débit l/min	Dose reçue par une "tranche" d'air (Gy)	Mobilité des ions positifs $\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$	Mobilité des ions négatifs $\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$	Rapport $\mu_+/\mu_-$
14,4	$2,4 \times 10^{-4}$	1,20	1,68	0,71
34,0	$1,0 \times 10^{-4}$	1,25	1,91	0,65
41,9	$7,9 \times 10^{-5}$	1,22	1,90	0,64

Nous constatons que les valeurs obtenues sont cohérentes avec les données de la littérature. Rappelons, toutefois, que notre approche ne permet pas de prendre en compte parfaitement l'effet de la charge d'espace dans le calcul des mobilités. En effet, la charge d'espace présente dans le condensateur peut varier en fonction des conditions d'opération. Elle peut varier notamment en fonction du champ électrique appliqué entre les bornes du condensateur, de plus, sa répartition n'est probablement pas homogène du fait de la collection progressive des ions dans le condensateur.

Bien qu'il existe certainement un biais entre les valeurs réelles des mobilités et celles que nous avons déterminées, nous pouvons remarquer une évolution significative de celles-ci en fonction de la dose reçue par l'air, en comparant, notamment, pour les mobilités des ions négatifs, les mesures réalisées pour un débit de 14,4 l/min ou de 34,0 l/min. En revanche, nous remarquons que les mobilités déterminées pour un débit de 34,0 l/min ou de 41,9 l/min sont stables. Nous pouvons déduire de ces résultats, que la variation du paramètre d'asymétrie représentée dans le tableau 2.2 est principalement due à la variation du rapport entre les mobilités des ions bipolaires.

## • Conclusions

L'ensemble de nos résultats expérimentaux montrent, d'une façon générale, que les propriétés des ions ne sont pas constantes. En effet, le rapport d'asymétrie, les concentrations ioniques et les mobilités électriques dépendent du débit, donc, de la dose d'irradiation et du temps de transfert.

La variation des concentrations en ions observée pour différents débits, provient principalement de la recombinaison. Par ailleurs, les valeurs obtenues sont inférieures à la concentration théorique déterminée par l'activité des sources et l'énergie du rayonnement. Ce résultat peut s'expliquer par un phénomène de recombinaison plus intense des ions au voisinage de la trajectoire du noyau alpha, appelé recombinaison en colonne (Bricard 1977, Mayya et Holländer 1995).

Nous avons également montré qu'il existe une différence non négligeable entre les concentrations en ions positifs et négatifs, cette différence étant due à leur diffusion asymétrique sur la paroi du conduit. Par ailleurs, cette différence de concentration induit une charge d'espace et un champ électrique significatifs.

Nos résultats montrent également que cette différence entre les concentrations des ions bipolaires influe sur la détermination précise du paramètre d'asymétrie, puisque le rapport de ces concentrations est différent de 1. Ainsi, nous montrons que l'hypothèse d'égalité des concentrations ioniques en milieu fortement ionisé n'est pas toujours justifiée.

Par ailleurs, nos mesures indiquent que le rapport d'asymétrie évolue significativement en fonction des mobilités des ions lorsque celles-ci ne sont pas constantes.

### II.3. *Evolution des concentrations ioniques dans un conduit cylindrique en aval d'une source d'ions*

#### II.3.1. Cadre de l'étude et procédure expérimentale

Nous avons montré précédemment que le rapport entre les concentrations en ions positifs et négatifs est différent de l'unité. Par ailleurs, une étude numérique réalisée par Hoppel et Frick (1990) a permis de montrer l'influence relative de divers mécanismes sur l'évolution des concentrations en ions bipolaires en aval d'une source d'ions. Leurs résultats montrent que l'écart entre les concentrations des ions positifs et négatifs est déterminé d'une part, par l'asymétrie entre les mobilités des ions bipolaires, d'autre part, par l'action du champ électrique dû à la charge d'espace.

Afin de mettre clairement en évidence l'influence de la variation des concentrations ioniques sur la détermination du paramètre d'asymétrie et ainsi sur la charge électrique d'un aérosol, nous réalisons des mesures des concentrations en ions positifs et négatifs à différentes distances en aval de notre source d'ions. Pour cela, nous utilisons un montage expérimental équivalent à celui présenté sur la figure 2.2. Pour faire varier la distance entre la zone d'ionisation et le système de mesure, nous intercalons successivement différentes longueurs de tube cylindrique.

Nous effectuons également en parallèle, une étude numérique du problème afin de comparer nos résultats expérimentaux à un modèle théorique.

#### II.3.2. Résultats expérimentaux

Nos mesures des concentrations en ions bipolaires sont réalisées avec un débit constant de 38,9 l/min. Pour ce débit, la vitesse moyenne de l'écoulement dans notre conduit est égale à  $51,6 \text{ cm s}^{-1}$ , et le nombre de Reynolds est d'environ 1340. Le régime de l'écoulement est donc laminaire.

Nous présentons sur la figure 2.8, l'évolution des concentrations en ions positifs et négatifs pour des distances comprises entre 0 et 320 cm. Signalons, que le point origine de nos mesures correspond à la distance minimale entre la zone ionisée et le condensateur, qui est d'environ 15 cm pour ces expériences. Nous représentons également, sur cette figure, l'évolution du rapport entre les concentrations des ions positifs et négatifs.



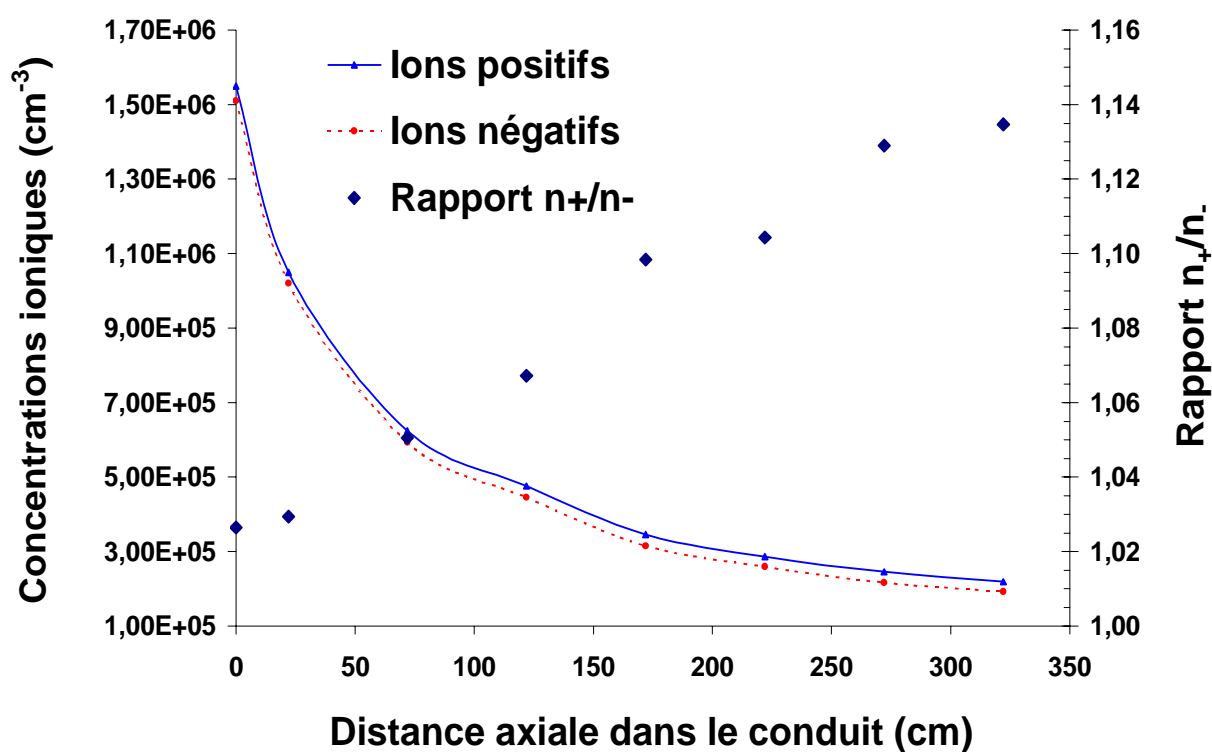


Figure 2.8 - Evolution des concentrations en ions positifs et négatifs en aval d'une source d'ions.

Nos résultats expérimentaux montrent, d'une part, que la concentration en ions positifs est toujours supérieure à celle des ions négatifs, d'autre part, que le rapport des concentrations évolue significativement dans le conduit. Nous interprétons cette variation du rapport par la diffusion plus rapide des ions négatifs, qui entraîne un écart croissant entre les concentrations en ions de chaque signe.

### II.3.3. Comparaison de nos résultats expérimentaux à un modèle simple

Nous comparons, dans un premier temps, nos données expérimentales avec la décroissance de la concentration en ions due uniquement au mécanisme de recombinaison. Pour cela, nous assimilons la distance parcourue par les ions dans le conduit à un temps d'évolution. Celui-ci est calculé à partir de la vitesse moyenne de l'air dans le conduit.

Nous déterminons l'évolution de la concentration en ions de chaque signe par leur recombinaison en intégrant l'équation 1.14. Nous obtenons ainsi la relation 2.3.

$$n(t) = n_0 / (1 + \alpha \cdot n_0 \cdot t), \quad (2.3)$$

où  $n_0$  représente la concentration initiale et  $\alpha$  le coefficient de recombinaison.

Nous représentons sur la figure 2.9 nos résultats expérimentaux ainsi que l'évolution de la concentration en ions déterminée par l'équation 2.3, respectivement pour des coefficients de recombinaison égaux à  $1,6 \times 10^{-6}$  puis à  $7 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ . La concentration de départ  $n_0$  est égale à la concentration moyenne des ions positifs et négatifs obtenue pour le premier point expérimental.

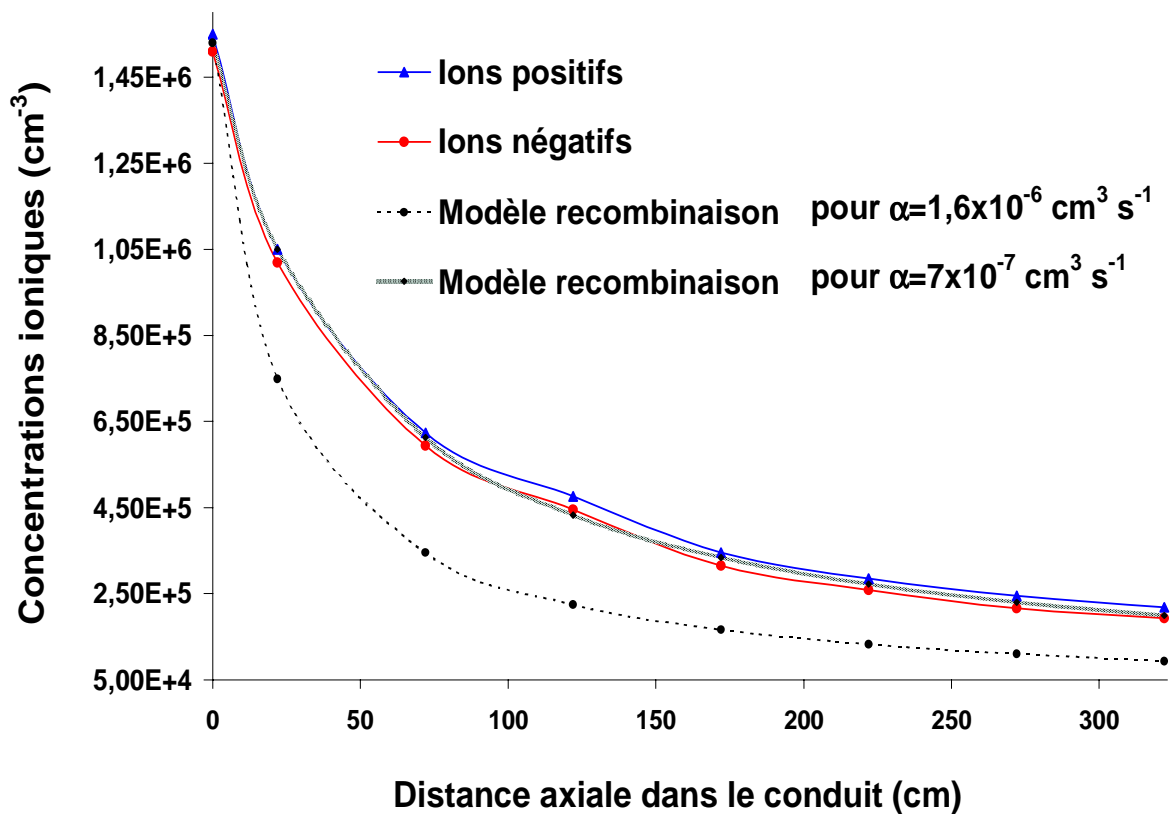


Figure 2.9 - Comparaison entre l'évolution des concentrations en ions déterminées expérimentalement et celle déterminée par la recombinaison des ions.

Nous déduisons de la figure 2.9 que l'évolution des concentrations ioniques est bien due principalement à la recombinaison des ions. Nous remarquons, cependant, que la courbe d'évolution déterminée pour  $\alpha=1,6 \times 10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$  présente un biais par rapport à nos données expérimentales. En revanche, nous obtenons une bonne concordance pour un coefficient égal à  $7 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ . Néanmoins, notre modèle simple suppose l'égalité des concentrations en ions positifs et négatifs. Il ne permet donc pas de modéliser avec précision la variation du rapport des concentration ioniques que nous observons dans nos expériences.

#### II.3.4. Comparaison de nos résultats à une étude numérique

Pour interpréter les résultats expérimentaux que nous avons obtenus, nous effectuons une étude numérique du problème à l'aide d'un code de calcul permettant de résoudre les équations de convection et de diffusion d'une quantité scalaire dans un milieu. L'utilisation de ce code de calcul permet ainsi de prendre en compte les pertes d'ions par diffusion asymétrique sur la paroi d'un conduit cylindrique.

Les équations de transport des ions positifs et négatifs en écoulement laminaire sont définies par les relations (Hoppel et Frick, 1990) :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{\phi}_+ = q - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- \text{ et } \vec{\nabla} \cdot \vec{\phi}_- = q - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- , \quad (2.4)$$

avec

$$\vec{\phi}_\pm = -D_\pm \cdot \vec{\nabla} n_\pm + \vec{V} \cdot n_\pm \pm \mu_\pm \cdot \vec{E} \cdot n_\pm , \quad (2.5)$$

et

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{e}{\epsilon_0} \cdot (n_+ - n_-) , \quad (2.6)$$

où  $\vec{\phi}_\pm$  représente le flux d'ions positifs ou négatifs,  $q$  le taux de production des ions ,  $n_\pm$  la concentration des ions positifs ou négatifs,  $D_\pm$  et  $\mu_\pm$  respectivement le coefficient de diffusion et la mobilité électrique des ions positifs ou négatifs,  $\vec{V}$  la vitesse locale de l'écoulement et  $\vec{E}$  le champ électrique local créé par la charge d'espace.

Pour résoudre ces équations nous utilisons le code de calcul TRIO EF (inclus dans CASTEM 2000) qui permet de résoudre les équations classiques de mécanique des fluides sur

un maillage par la méthode des éléments finis. Ce code comporte des opérateurs mathématiques prédéfinis qui permettent de discrétiser les différents termes des équations de transport (convection, diffusion, gradient ...) sur un maillage du système préalablement défini (Magnaud and Goldstein, 1989).

Pour définir le maillage correspondant à la géométrie de notre problème nous nous basons sur l'étude réalisée par Malet (1997) dont la géométrie était similaire. Nous choisissons ainsi un maillage régulier avec une longueur axiale des mailles égale à 2,5 mm et une longueur radiale égale à 0,5 mm.

Nous limitons notre étude à la résolution des équations de transport en négligeant l'action de la charge d'espace. Les coefficients de diffusion utilisés dans le système d'équations sont calculés à partir des mobilités des ions positifs et négatifs en utilisant la relation d'Einstein (eq. 1.4).

Etant donnée l'incertitude sur la détermination des mobilités des ions positifs et négatifs dans nos expériences du fait de la charge d'espace, nous utilisons des valeurs issues de la littérature respectivement égales à  $1,4 \times 10^{-4}$  et  $1,8 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  (Hoppel et Frick, 1990). Le coefficient de recombinaison utilisé est égal à  $1,6 \times 10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ . Dans nos calculs, nous supposons que le profil de vitesse est représenté par un écoulement laminaire parabolique. Les conditions aux limites du problème sont, d'une part, une concentration nulle sur la paroi, d'autre part, les concentrations initiales des ions positifs et négatifs sont égales aux valeurs des premiers points expérimentaux.

Nous représentons sur la figure 2.10 les profils de concentrations obtenus pour les ions positifs et négatifs à différentes distances dans le conduit cylindrique respectivement égales à 22, 72, 172 et 272 cm. Etant donné que le problème est axisymétrique, nous représentons seulement les demi profils. L'origine de l'axe radial correspond à la paroi du conduit et la distance 2 cm correspond à son axe.

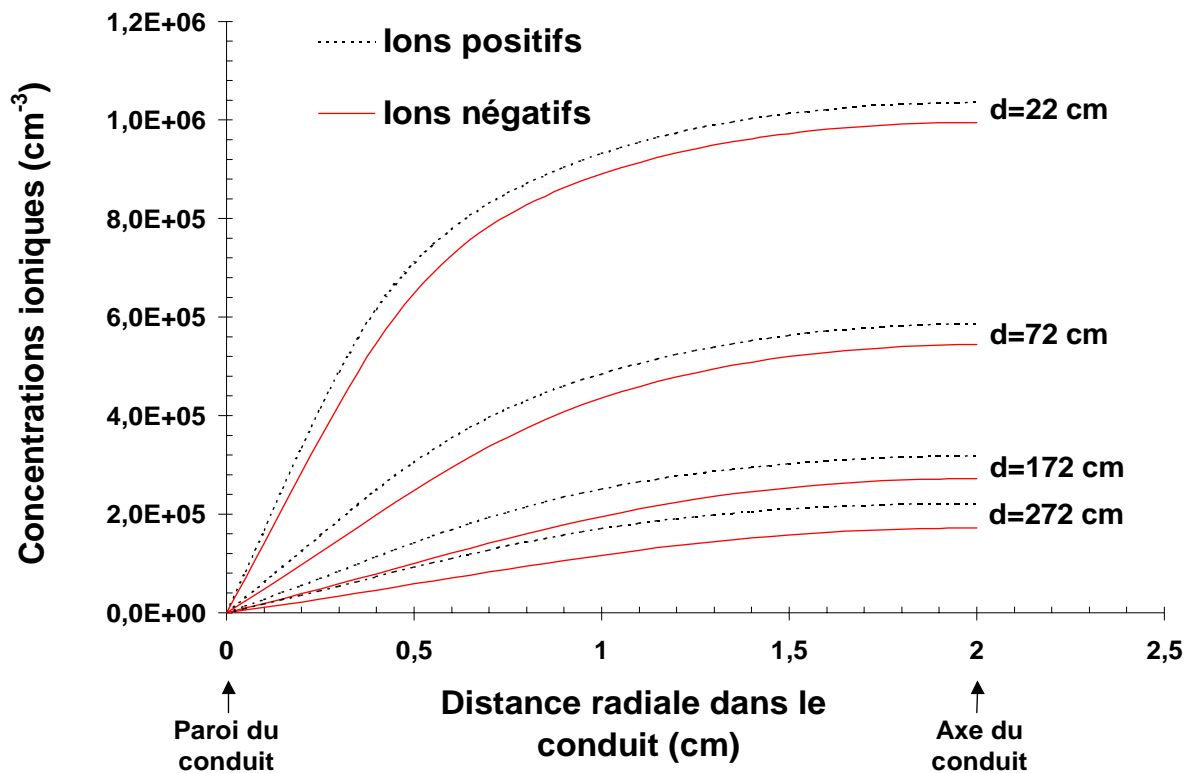


Figure 2.10 - Profils des concentrations ioniques calculés pour différentes distances en aval d'une source d'ions.

Cette figure 2.10 nous permet de déduire, d'une part, que le rapport des concentrations ioniques varie en fonction de la distance axiale dans le conduit, ce qui est en accord avec nos résultats expérimentaux représentés sur la figure 2.8, d'autre part, que le rapport des concentrations ioniques varie également suivant l'abscisse radiale du conduit.

Nous représentons sur la figure 2.11 l'évolution des concentrations ioniques moyennes obtenus par le calcul numérique ainsi que nos résultats expérimentaux. Nous constatons qu'il existe un écart entre la modélisation et nos résultats expérimentaux. Cet écart apparaît et augmente sur les premiers points de calcul, où le terme de recombinaison est le plus important. Nous supposons donc qu'il peut provenir, d'une part, de la valeur du coefficient de recombinaison utilisé, d'autre part, de notre système de mesure des ions qui ne permet pas de réaliser une mesure parfaitement locale de la concentration. Rappelons aussi, que nos calculs sont réalisés en supposant un profil parabolique de vitesse. Cependant, la longueur d'établissement de l'écoulement que nous utilisons dans notre étude expérimentale est légèrement plus faible que celle recommandée (Malet, 1997). De ce fait, le profil parabolique n'est peut être pas pleinement développé aux premiers points de mesure.

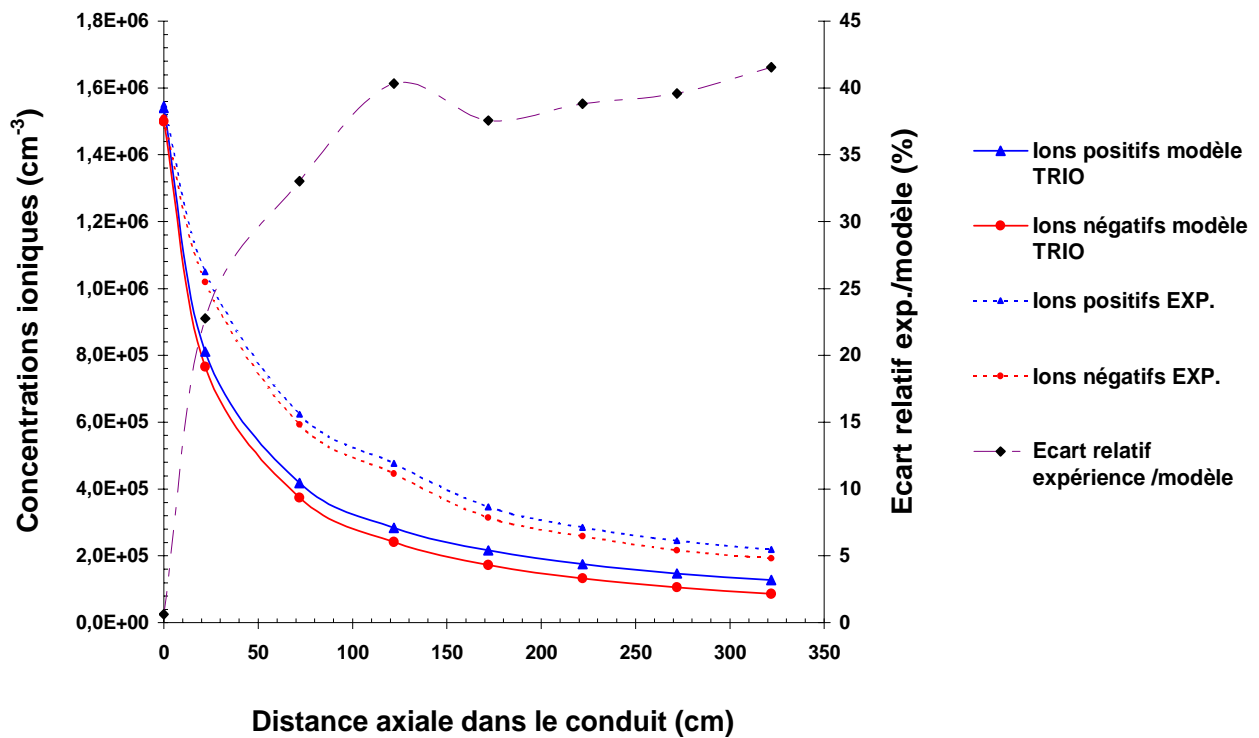


Figure 2.11 - Evolution des concentration ioniques dans un conduit cylindrique (comparaison modèle numérique et résultats expérimentaux).

Nous représentons sur la figure 2.12 l'évolution axiale du rapport des concentrations ioniques, déterminé respectivement à partir du calcul numérique et de nos résultats expérimentaux. Nous constatons, là encore, que le résultat calculé par le modèle n'est pas en accord avec nos expériences. Le rapport des concentrations positives et négatives calculé numériquement, croit beaucoup plus vite que celui déterminé expérimentalement. Nous expliquons ce résultat par l'existence d'une charge d'espace que l'on néglige dans la résolution numérique, et par les valeurs utilisées des coefficients de diffusion.

En effet, le champ électrique créé par la charge d'espace étant dirigé vers la paroi, il attire ainsi les ions négatifs vers l'axe du conduit et repousse les ions positifs vers la paroi. Ce phénomène vient donc limiter l'effet de la diffusion asymétrique des ions positifs et négatifs vers la paroi. Signalons, par ailleurs, que l'importance de cet effet à également été mis en évidence grâce aux différents calculs numériques effectués par Hoppel et Frick (1990).

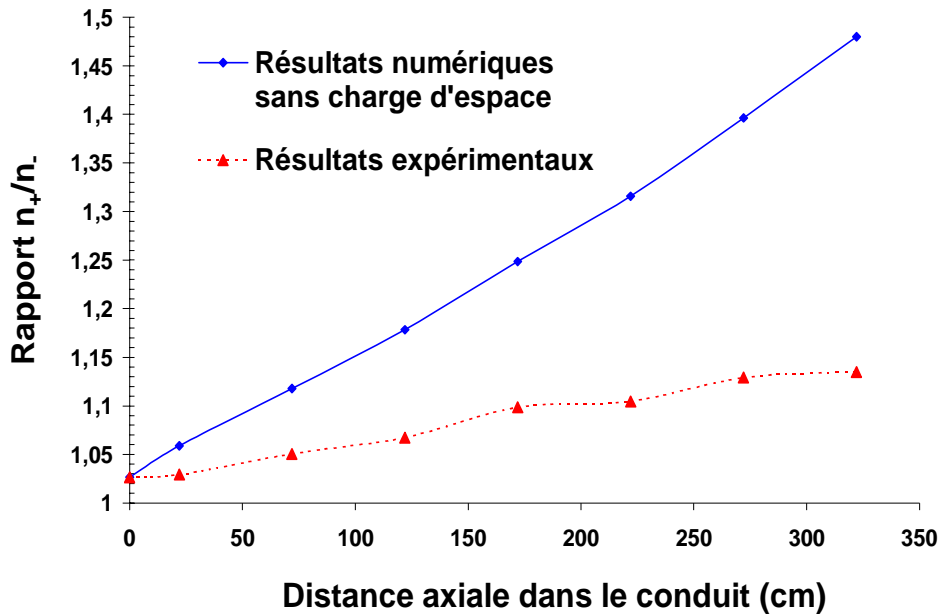


Figure 2.12 - Evolution axiale du rapport des concentrations ioniques.

Nous venons de mettre en évidence la variation axiale du rapport des concentrations ioniques, mais il existe aussi une variation radiale de ce rapport toujours du fait de la diffusion asymétriques des ions positifs et négatifs sur la paroi.

Pour montrer l'effet de la paroi sur ce rapport, nous représentons sur la figure 2.13 son évolution suivant le rayon du conduit, et ceci pour plusieurs distances axiales par rapport à la source d'ions. L'origine de l'abscisse radiale correspond toujours à la paroi.

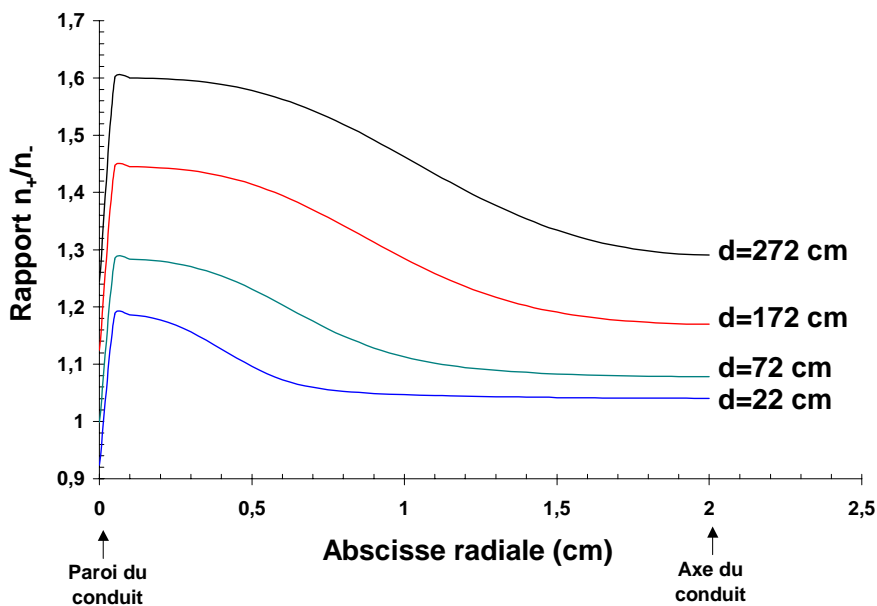


Figure 2.13 - Evolution radiale du rapport entre les concentrations ioniques.

Nous constatons sur la figure 2.13 une variation importante du rapport des concentrations entre l'axe du conduit et le voisinage de la paroi. Toutefois, de façon analogue à la variation axiale du rapport des concentrations ioniques, nous supposons que le fait de négliger la charge d'espace conduit à une surestimation de la variation du rapport des concentrations.

### II.3.5. Conclusions

Bien que l'étude précédente ne fasse pas partie du sujet principal de notre thèse, nous tenions à la présenter, car l'ensemble des résultats expérimentaux et numériques que nous obtenons permet finalement de montrer la complexité de l'étude approfondie de l'état de charge électrique d'un aérosol en relation avec les propriétés ioniques du milieu. Par ailleurs, ces résultats sont utiles pour l'interprétation de résultats liés à la charge électrique des aérosols.

Notre étude numérique du problème ainsi que nos résultats expérimentaux nous permettent ainsi d'exposer certaines situations, où la variation des concentrations ioniques est significative et peut donc affecter la valeur du paramètre d'asymétrie. Toutefois, notre étude est incomplète car elle nécessite la prise en compte de la charge d'espace. Néanmoins, nous obtenons un accord qualitatif avec nos résultats expérimentaux.

De ce fait, nous pouvons finalement déduire quelques conclusions générales, par exemple, que le rapport entre les concentrations des ions positifs et négatifs augmente avec la distance axiale dans un conduit ou bien augmente au voisinage des parois. Nous verrons, dans le chapitre suivant, que ces variations ont une influence sensible sur la distribution des charges électriques d'un aérosol.



### III. Mesure des propriétés des ions produits par un rayonnement gamma

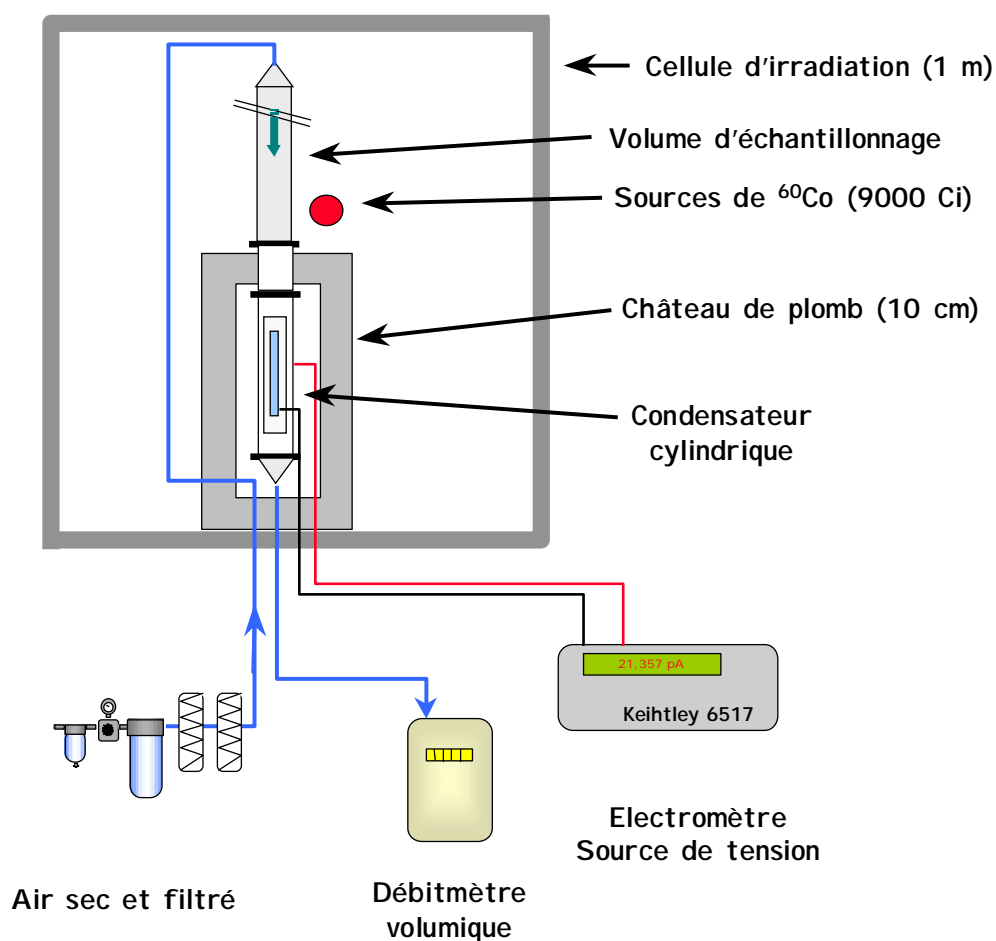
#### III.1. Dispositif expérimental utilisé pour l'irradiation gamma

L'utilisation d'un rayonnement gamma pour ioniser un volume d'échantillonnage permet, d'une part, d'obtenir un fort taux d'ionisation si la source a une activité suffisante, d'autre part, de faire varier facilement l'intensité d'ionisation en modifiant la distance entre la source et le volume à irradier. Néanmoins, la manipulation de sources émettrices gamma de fortes activités nécessite la mise en œuvre de moyens de protection contre les rayonnements radioactifs telle que les cellules d'irradiation.

Nous disposons au sein de notre laboratoire d'une telle cellule dotée de sources de  $^{60}\text{Co}$  pouvant fournir une intensité d'ionisation bien supérieure à celle obtenue avec nos sources alpha. Le Cobalt 60 est certes un émetteur bêta-gamma, mais son rayonnement bêta est arrêté par l'enveloppe de la source et la paroi du volume d'échantillonnage. De ce fait, c'est le rayonnement gamma ainsi que le rayonnement de freinage associé qui déterminent l'intensité d'ionisation dans le milieu irradié.

L'activité totale des sources de  $^{60}\text{Co}$  ( $T=5,27$  ans) dont nous disposons était égale au moment des expériences à environ  $3,33 \times 10^8$  MBq (9000 Ci). A l'aide de celle-ci, nous pouvons aisément obtenir un débit de dose de l'ordre de 10 kGy/h dans un volume d'échantillonnage équivalent à la zone d'ionisation obtenue précédemment avec les sources alpha. Ce débit de dose correspond à une intensité d'ionisation de l'ordre de  $6,2 \times 10^{11}$  p.i.  $\text{cm}^{-3}$  (eq. 1.13), 3600 fois supérieure à celle produite par les sources d'Américium.

Pour réaliser la mesure du rapport d'asymétrie entre les conductibilités des ions positifs et négatifs, il nous a donc fallu adapter notre montage expérimental, précédemment décrit, pour travailler dans la cellule d'irradiation. Nous représentons sur la figure 2.14 notre nouveau dispositif.



**Figure 2.14** - Schéma du dispositif expérimental pour la mesure du rapport d'asymétrie sous irradiation gamma.

Notre montage expérimental est similaire à celui utilisé pour l'étude des ions produits par une source alpha, le volume d'ionisation étant toujours composé d'une portion de tube cylindrique de diamètre égal à 4 cm. Cependant, pour mesurer le paramètre d'asymétrie et les concentrations ioniques au plus proche de la zone d'ionisation, nous avons dû placer notre condensateur à l'intérieur de la cellule d'irradiation.

Afin de pouvoir appliquer notre méthode de mesure, nous protégeons le condensateur du rayonnement gamma par un château de plomb d'une épaisseur de 10 cm. Cette protection permet d'atténuer le débit de dose et ainsi le taux de production d'ions dans le condensateur d'un facteur d'environ  $10^3$ . Nous montrons sur les figures 2.15 et 2.16 des photos de la cellule d'irradiation et du château de plomb contenant notre condensateur.



Figure 2.15 - Photo de la cellule d'irradiation.

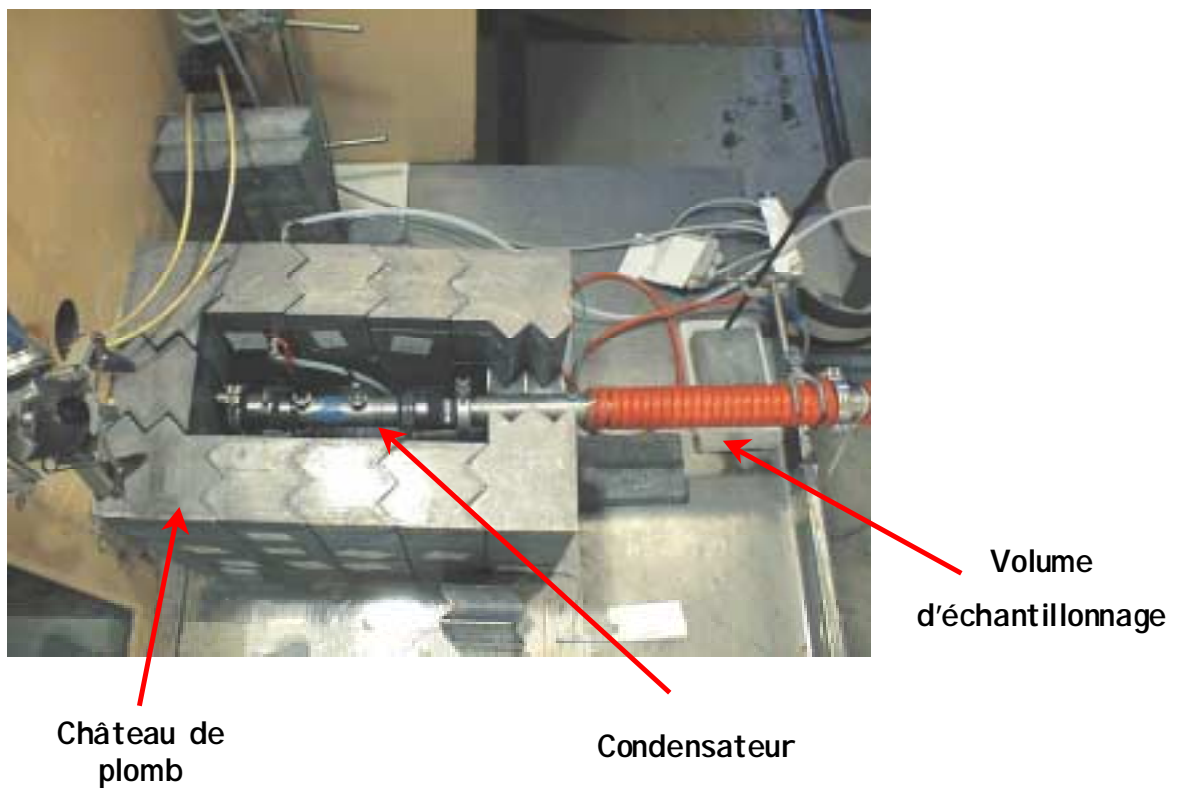


Figure 2.16 - Photo du condensateur protégé par le château de plomb dans la cellule d'irradiation.

Nous pouvons faire varier facilement l'intensité d'ionisation dans le volume d'échantillonnage en changeant la distance entre le volume et les sources à l'aide d'un système de bras télémanipulateurs. Afin de caractériser les intensités d'ionisation que nous voulons obtenir dans le volume d'échantillonnage, nous effectuons des mesures de débits de dose en fonction de la distance de celui-ci par rapport aux sources. Ces mesures sont réalisées à l'aide de différentes chambres d'ionisation compatibles avec les débits de doses appliqués.

Nos mesures montrent que l'intensité d'ionisation n'est pas parfaitement homogène dans le volume d'échantillonnage, surtout pour les forts débits de dose. En effet, pour une source radioactive supposée linéaire, le débit de dose en un point varie en fonction de l'inverse de la distance entre la source et ce point. En conséquence, lorsque les sources sont très proches du volume d'échantillonnage, nous constatons des variations du débit de dose de l'ordre de 30 % selon l'axe radial du conduit. Néanmoins, la configuration de l'irradiation permet d'atteindre un débit de dose de 12 kGy/h au centre du conduit lorsque les sources sont très proches de la paroi du volume d'échantillonnage.

Nous représentons sur la figure 2.17 une configuration de l'irradiation du volume d'échantillonnage, ainsi que les mesures de débits de doses en différents points du volume. Signalons qu'il est nécessaire de positionner les sources au plus près du château de plomb pour que l'intensité d'ionisation soit maximum dans un volume d'échantillonnage proche du condensateur.

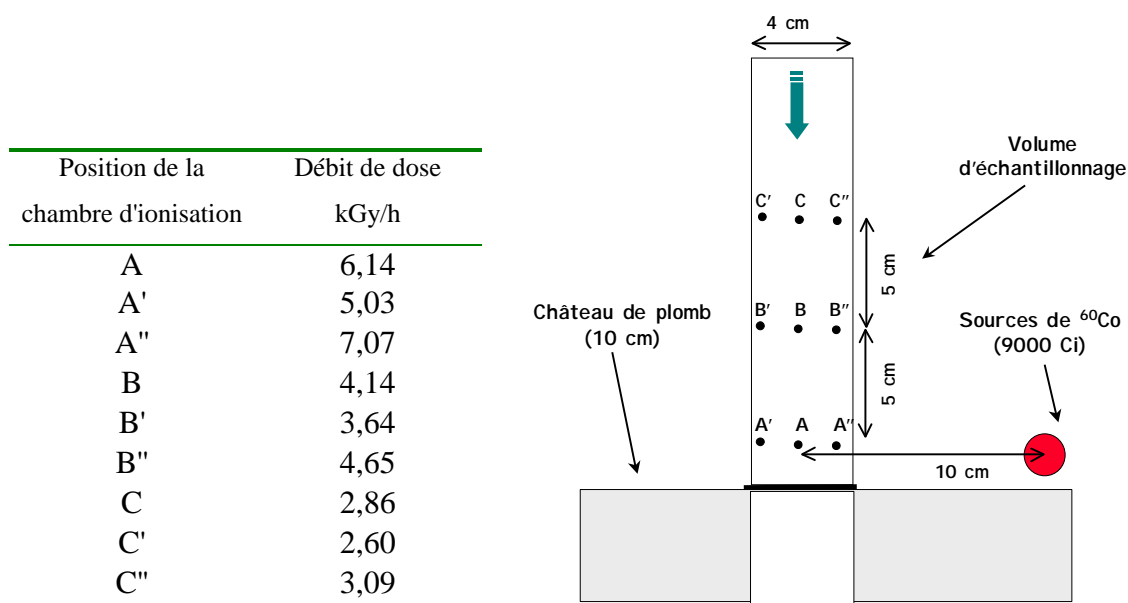


Figure 2.17 - Mesure du débit de dose dans le volume d'échantillonnage.

### III.2. Mesure du rapport d'asymétrie et des concentrations ioniques

#### III.2.1. Résultats.

Nous représentons sur les figures 2.18 et 2.19 le courant résultant de la collection des ions sur l'électrode de mesure en fonction de la différence de potentiel appliquée entre les électrodes. Ces résultats concernent des débits de dose respectivement égaux à environ 24 Gy/h, et 7000 Gy/h, ils sont obtenus pour des distances respectives entre la source et le volume d'environ 2 m et 10 cm . Nos mesures sont réalisées avec des débits respectifs de 37,1 l/min et 35,3 l/min.

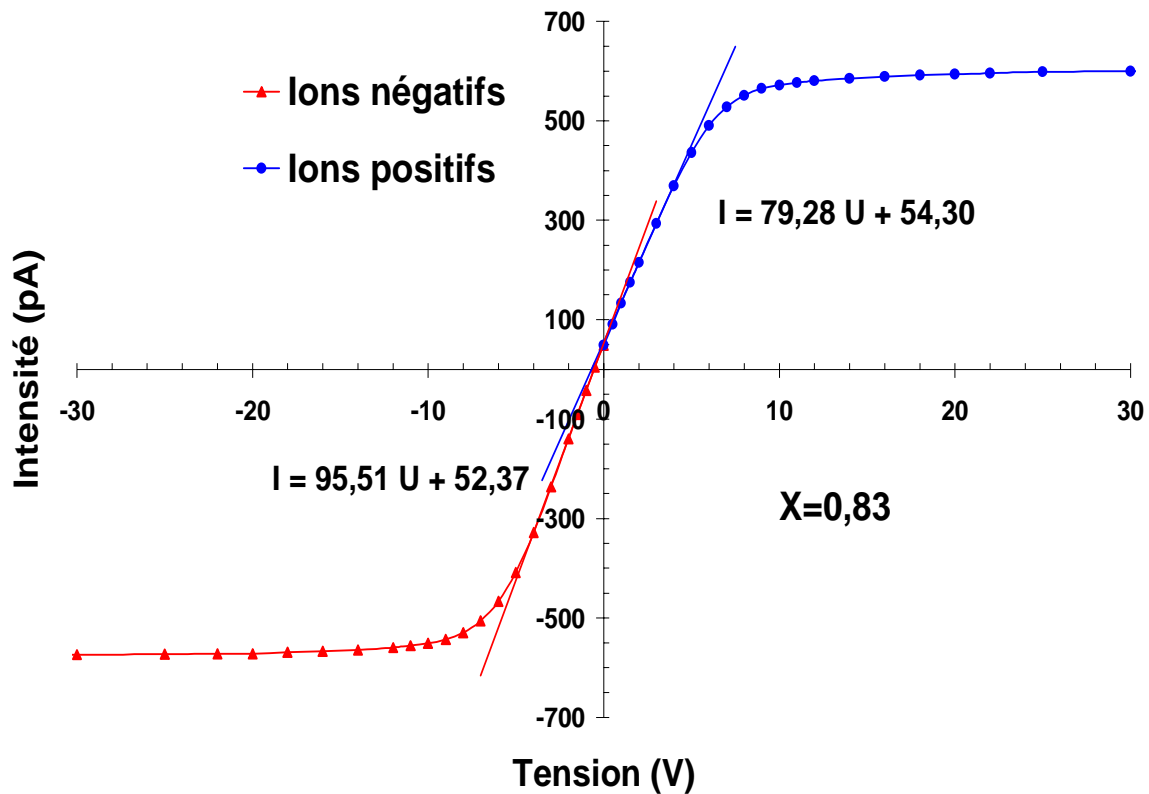


Figure 2.18 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit de dose égal à 24 Gy/h.

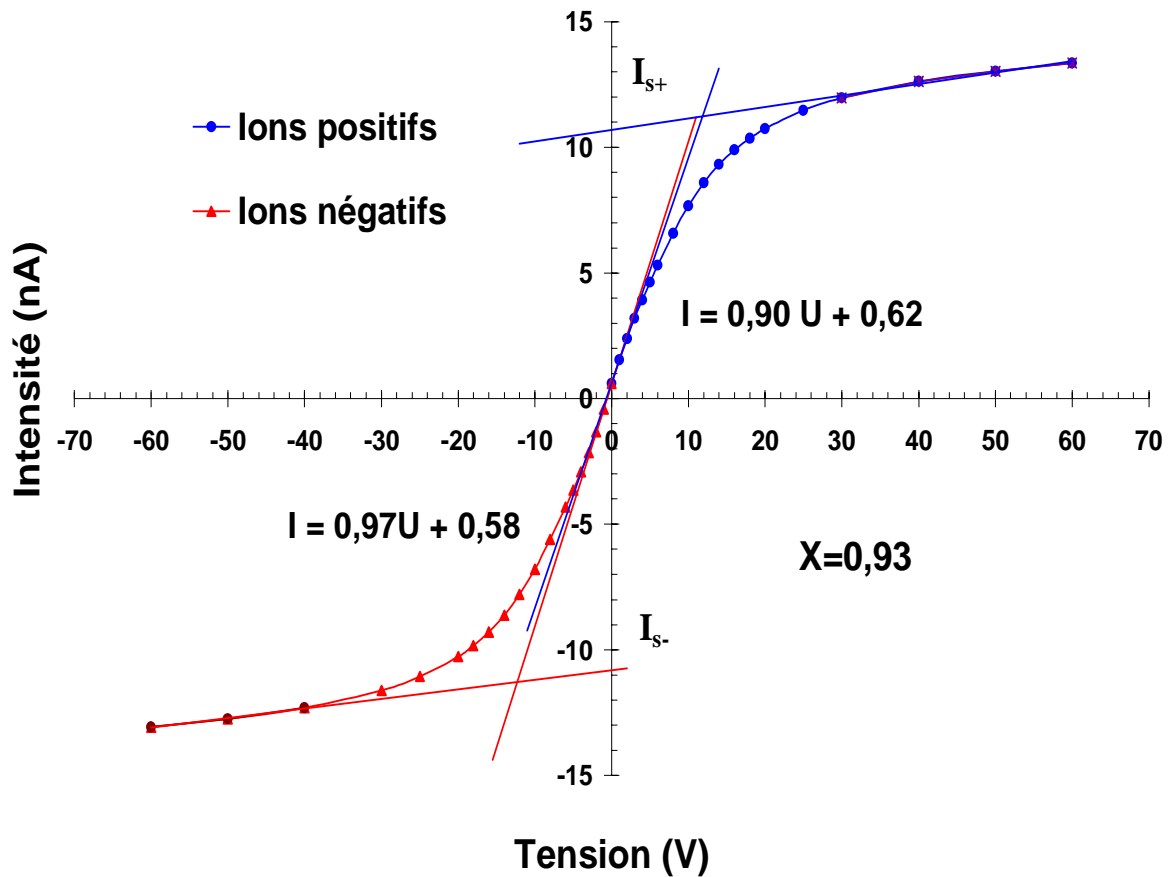


Figure 2.19 - Mesure du paramètre d'asymétrie pour un débit de dose égal à 7000 Gy/h.

Nous remarquons que les courants de saturation ne sont pas constants, notamment dans le cas de la mesure réalisée pour un fort débit de dose de 7 kGy/h. Ce résultat est dû à la présence d'un taux de production d'ions non négligeable dans le condensateur, cela malgré l'atténuation du rayonnement gamma par l'écran de plomb.

- Détermination des concentrations ioniques

Pour déterminer les concentrations ioniques à partir de nos résultats expérimentaux, nous devons tenir compte des ions produits et collectés à l'intérieur du condensateur. Le courant de saturation mesuré est alors fonction de la collection des ions provenant du volume d'échantillonnage et d'un terme dépendant d'une part, du taux de production d'ions dans le condensateur, d'autre part, du champ électrique appliqué entre les électrodes.

La collection des ions produits dans un champ électrique est un principe fréquemment utilisé pour la mesure des rayonnements ionisants, notamment dans les chambres d'ionisation. En supposant que la concentration des ions produits dans le condensateur dépend uniquement de leur recombinaison, nous pouvons calculer l'intensité du courant mesuré à l'aide de l'expression 2.7 (Bernigau et Luck, 1986).

$$i = n \cdot Q_v \cdot e + \frac{c \cdot e}{\epsilon_0} \cdot \mu \cdot \sqrt{\frac{q}{\alpha}} \cdot U , \quad (2.7)$$

où  $i$  représente l'intensité du courant (A),  $n$  la concentration en ions de la polarité étudiée ( $m^{-3}$ ),  $Q_v$  le débit dans le condensateur ( $m^3 s^{-1}$ ),  $e$  la charge élémentaire (C),  $c$  la capacité du condensateur (F),  $\mu$  la mobilité des ions étudiés ( $m^2 V^{-1} s^{-1}$ ),  $q$  le taux d'ionisation dans le condensateur (p.i.  $m^{-3} s^{-1}$ ),  $\alpha$  le coefficient de recombinaison des ions ( $m^3 s^{-1}$ ) et  $U$  la tension entre les électrodes (V).

Pour calculer les concentrations ioniques nous utilisons donc les valeurs  $i_{s+}$  et  $i_{s-}$ , représentés sur la figure 2.17, des courants de saturation que nous extrapolons pour une tension nulle. Nous présentons dans le tableau 2.4, les concentrations en ions positifs et négatifs ainsi obtenues pour des débits de doses égaux à environ 24 Gy/h, puis à 7 kGy/h.

Tableau 2.4 - Concentrations en ions positifs et négatifs dans le volume d'échantillonnage.

Débit de dose (Gy/h)	Concentration en ions positifs ( $cm^{-3}$ )	Concentration en ions négatifs ( $cm^{-3}$ )
$\approx 24$	$6,05 \times 10^6$	$5,79 \times 10^6$
$\approx 7000$	$1,19 \times 10^8$	$1,15 \times 10^8$

- Détermination du rapport d'asymétrie entre les conductibilités des ions positifs et négatifs

Comme pour les émetteurs alpha, le rapport d'asymétrie entre les conductibilités ioniques est déterminé en effectuant le rapport des pentes relatives aux caractéristiques des ions respectivement positifs et négatifs. Toutefois, de façon analogue à la détermination des concentrations ioniques, nous devons déterminer l'influence de l'intensité d'ionisation présente dans le condensateur sur la mesure de ce paramètre d'asymétrie. Pour cela, nous exprimons l'intensité du courant mesuré en fonction de la conductibilité des ions provenant de la zone d'ionisation et de la conductibilité des ions produits dans le condensateur sous l'effet d'une intensité d'ionisation  $q$ . En supposant qu'il existe une seule catégorie d'ions de mobilité  $\mu$ , nous exprimons l'intensité du courant par la relation 2.8.

$$i = \frac{c}{\epsilon_0} \cdot e \cdot \mu \cdot \left( n + \sqrt{\frac{q}{\alpha}} \right) \cdot U . \quad (2.8)$$

Le rapport des pentes relatives aux caractéristiques des ions positifs et négatifs s'exprime alors par la relation 2.9.

$$\chi = \frac{\mu_+ \cdot n_+}{\mu_- \cdot n_-} \cdot \frac{1 + \epsilon}{1 + \epsilon'} , \text{ avec } \epsilon = \sqrt{q/\alpha}/n_+ \text{ et } \epsilon' = \sqrt{q/\alpha}/n_- . \quad (2.9)$$

Pour exprimer  $\epsilon$  et  $\epsilon'$ , nous devons déterminer la concentration en ions due au terme de production dans le condensateur. Celle ci peut être estimée en utilisant la relation 2.7 et la pente du courant de saturation obtenue expérimentalement. Pour un débit de dose égal à environ 7 kGy/h, nous obtenons ainsi  $\epsilon \approx \epsilon' \approx 10^{-2}$ . Nous en déduisons que l'intensité d'ionisation présente dans le condensateur n'a qu'une influence négligeable sur la détermination du paramètre d'asymétrie.

Dans ces conditions, les rapports d'asymétrie déterminés pour des débits de doses égaux à 24 Gy/h puis à 7 kGy/h sont respectivement  $X=0,83$  et  $X=0,93$ .



- Détermination des mobilités électriques des ions

De façon analogue à la détermination des mobilités électriques des ions produits par les sources émettrices alpha, nous prenons en compte les écarts de tension permettant de compenser le champ électrique induit par la charge d'espace. Ces écarts de tensions sont égaux à environ -0,5 V et -0,6 V pour des débits de doses respectivement égaux à 24 Gy/h et 7 kGy/h. Nous présentons dans le tableau 2.5 les valeurs des mobilités moyennes calculées à partir de nos résultats expérimentaux qui sont représentés sur les figures 2.16 et 2.17.

Tableau 2.5 - Mobilités des ions obtenus pour différents débit de dose.

Débit l/min	Débit de dose Gy/h	Mobilité des ions		Rapport $\mu_+/\mu_-$
		positifs $\mu_+$ $\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$	négatifs $\mu_-$ $\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$	
37,1	$\approx 24$	1,08	1,31	0,82
35,3	$\approx 7000$	0,58	0,62	0,94

Nous constatons que ces mobilités sont notablement plus faibles que celles obtenues avec un rayonnement alpha. Nous pouvons en déduire dans ce cas, que les ions ont une dimension plus importante, notamment dans le cas de leur production sous une forte irradiation.

Ce résultat peut être interprété par des réactions de radiolyse plus complexes et plus nombreuses entraînant la formation d'ions plus gros à partir des impuretés gazeuses (vapeur, molécules) présentes dans l'air. Ce résultat peut également résulter d'une évolution beaucoup plus rapide des petits ions primaires par transfert de charges lors de collisions avec des agrégats neutres.

Nous remarquons, par ailleurs, que le rapport entre les mobilités des ions positifs et négatifs se rapproche de 1 lorsque l'irradiation augmente fortement. En conséquence, l'écart entre la dimension des ions positifs et négatifs se réduit. Cette variation du rapport des mobilités permet d'expliquer la variation du paramètre d'asymétrie, entre les mesures effectuées avec un débit de dose de 24 Gy/h et un débit de dose de 7 kGy/h.

### III.2.2. Variation du rapport d'asymétrie en fonction du temps de résidence des ions dans la zone ionisée.

Nous venons de mettre en évidence une variation des propriétés des ions bipolaires en fonction de l'intensité d'ionisation présente dans le volume d'échantillonnage. Toutefois, comme nous l'avons montré pour les ions produits par une source alpha, il existe une évolution des ions en fonction du temps de résidence dans la zone d'ionisation puis, du temps de transfert vers le système de mesure.

Afin de vérifier cette hypothèse dans le cas du rayonnement gamma, nous mesurons le paramètre d'asymétrie pour différents temps d'irradiation de l'air échantillonné, donc, pour différentes doses absorbées. Cette mesure est réalisée en faisant varier le débit dans le conduit d'échantillonnage.

Dans le cas de la mesure avec un fort taux d'ionisation, nous ne constatons pas de variation sensible du paramètre d'asymétrie en fonction du débit d'analyse. En revanche, pour un débit de dose plus faible, nous remarquons une variation. Nous représentons sur la figure 2.20 nos résultats expérimentaux, obtenus pour différents temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation et pour un débit de dose constant d'environ 15 Gy/h.

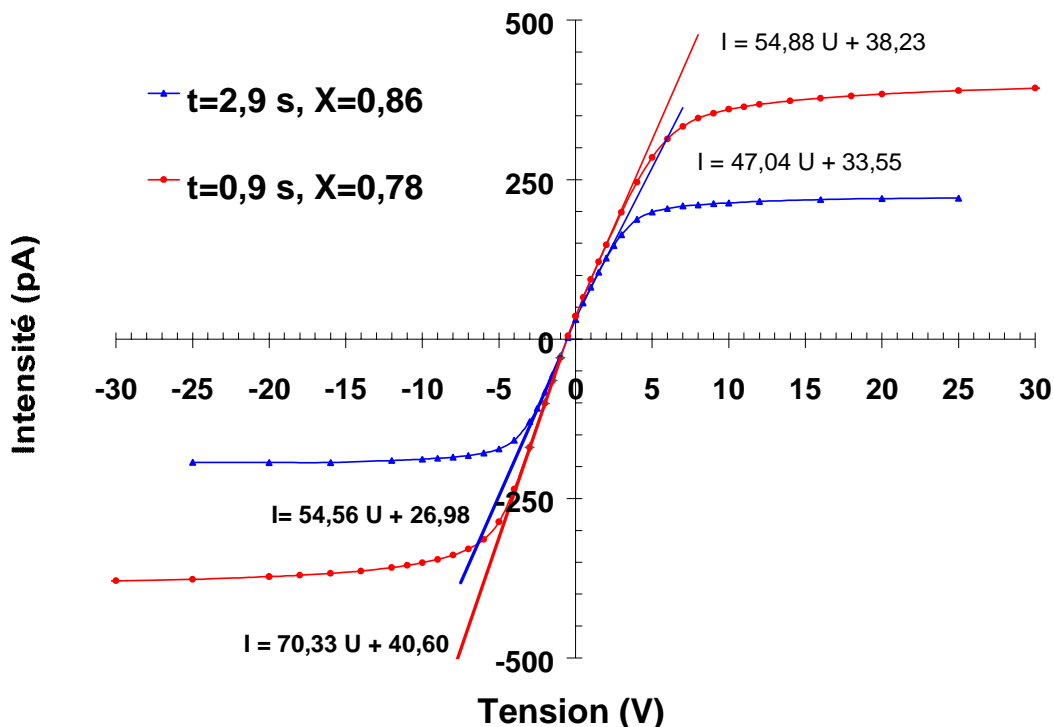


Figure 2.20 - Variation du paramètre d'asymétrie en fonction du temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation.

Les paramètres d'asymétrie déterminés pour des temps de résidences égaux à 0,9 s et 2,9 s sont respectivement 0,78 et 0,86. Par ailleurs, le paramètre d'asymétrie  $X=0,83$  obtenu sur la figure 2.18 pour un débit de dose du même ordre de grandeur correspond à un temps de résidence estimé à 1,6 s. Nous constatons que ce résultat est cohérent avec les autres mesures.

Afin de comparer ces résultats, nous calculons la dose totale reçue par une "tranche" d'air dans le volume d'échantillonnage irradié. Pour calculer cette dose, nous supposons que l'irradiation est homogène, cette hypothèse étant justifiée pour les faibles débits de doses, car les sources sont suffisamment éloignées du volume d'échantillonnage. La dose est alors calculée en fonction du débit de dose, de la vitesse moyenne de l'écoulement et de la longueur du volume d'échantillonnage. Nous regroupons les différents résultats obtenus dans le tableau 2.6.

**Tableau 2.6** - Evolution du paramètre d'asymétrie en fonction du temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation.

Temps de résidence (s)	Dose reçue par une "tranche" d'air (Gy)	Paramètre d'asymétrie X
0,9	$3,8 \times 10^{-3}$	0,78
1,6	$1,06 \times 10^{-2}$	0,83
2,9	$1,21 \times 10^{-2}$	0,86

Nous présentons dans le tableau 2.7, à titre indicatif les valeurs des mobilités des ions positifs et négatifs calculées dans chacun des cas.

**Tableau 2.7** - Mobilité des ions positifs et négatifs obtenus pour différents temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation.

Dose reçue par une "tranche" d'air (Gy)	Mobilité des ions positifs $\mu_+$ $\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$	Mobilité des ions négatifs $\mu_-$ $\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$
$3,8 \times 10^{-3}$	1,27	1,63
$1,06 \times 10^{-2}$	1,08	1,31
$1,21 \times 10^{-2}$	1,05	1,35

### III.3. Evolution du rapport d'asymétrie en fonction de la concentration ionique et de la dose

Afin de déterminer plus précisément l'évolution du paramètre d'asymétrie en fonction de l'intensité d'ionisation dans le volume d'échantillonnage, nous effectuons sa mesure pour différents débits de dose compris entre 5 Gy/h et environ 12 kGy/h. Ces mesures sont réalisées avec un débit d'analyse constant et égal à 21,1 l/min. Elles correspondent donc à différentes doses de rayonnement reçues par une "tranche" d'air dans le volume d'échantillonnage.

Sur la figure 2.21, nous présentons les résultats obtenus pour cette série d'expériences, en fonction de la concentration moyenne des ions positifs et négatifs, celle-ci étant déterminée conjointement au paramètre d'asymétrie. Nos résultats sont représentés avec une incertitude relative égale à 2,5 %, estimée à partir de celles sur la détermination des pentes des caractéristiques courant-tension.

Conformément à nos résultats précédents, nous observons une variation du paramètre d'asymétrie en fonction de la concentration en ions, donc en fonction de l'intensité d'ionisation présente dans le milieu. Nous remarquons, par ailleurs, que le rapport d'asymétrie est proche de 1 lorsque la concentration en ions atteint  $10^8 \text{ cm}^{-3}$ .

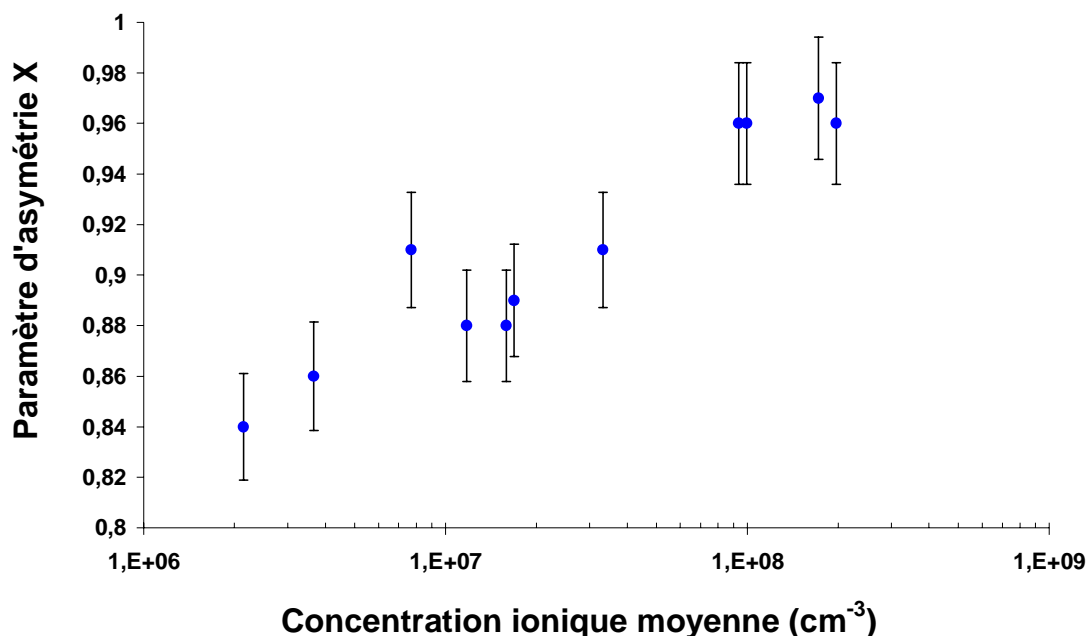


Figure 2.21 - Variation du paramètre d'asymétrie en fonction de la concentration ionique.

Finalement, l'ensemble de nos résultats expérimentaux obtenus pour un rayonnement alpha ou gamma montrent donc que le paramètre d'asymétrie varie, d'une part, en fonction du temps de résidence de l'air dans la zone d'ionisation, d'autre part, en fonction de l'intensité d'ionisation présente dans cette zone. Afin de pouvoir comparer les valeurs du paramètre d'asymétrie obtenues dans ces différentes situations, nous représentons sur la figure 2.22 la variation de ce paramètre en fonction de la dose reçue par une "tranche" d'air dans la zone d'ionisation.

Dans le cas du rayonnement alpha ou d'un rayonnement gamma à faible débit de dose ( $< 20$  Gy/h), nous considérons que celui-ci est homogène dans la zone d'ionisation. La dose reçue est alors calculée en effectuant le produit du débit de dose par le temps de résidence dans la zone d'ionisation. En revanche, lorsque le débit de dose est élevé, celui-ci n'est pas homogène dans la zone ionisée, nous le montrons sur la figure 2.17. Nous utilisons alors un logiciel (Microshield) permettant de calculer le débit de dose en différents points du volume d'échantillonnage, ceci en fonction de la configuration de l'irradiation. Ainsi, à partir de nos calculs nous estimons la dose moyenne reçue par une "tranche" de gaz lorsque l'irradiation est inhomogène.

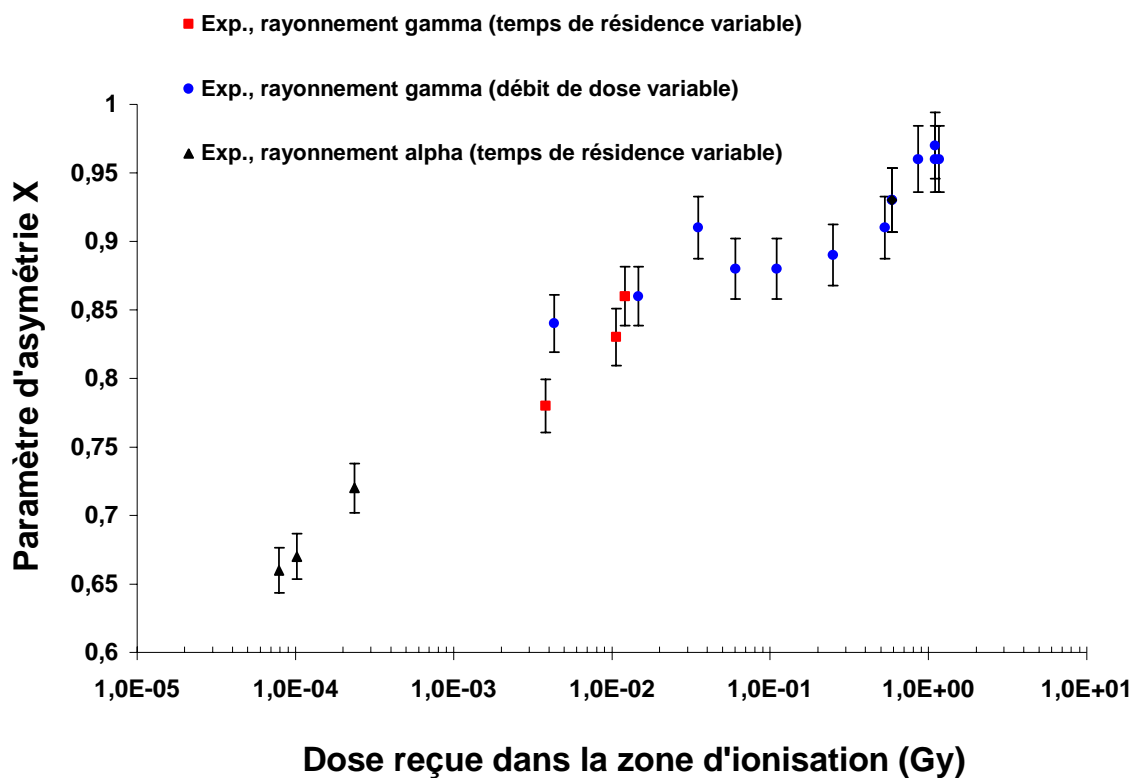


Figure 2.22 - Variation du paramètre d'asymétrie en fonction de la dose reçue dans la zone d'ionisation pour différents types de rayonnements.

La figure 2.22 confirme bien que la valeur du paramètre d'asymétrie est effectivement liée à la dose reçue dans le milieu ionisé. En effet, le paramètre d'asymétrie croît lorsque la dose augmente, ceci pour des valeurs comprises entre  $10^{-4}$  Gy et environ 1 Gy. Nous remarquons, par ailleurs, que le paramètre d'asymétrie est proche de 1 pour des doses voisines de 1 Gy.

#### **IV. Conclusion**

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés des petits ions présents dans un milieu ionisé pendant une irradiation. Le paramètre d'asymétrie qui permet de quantifier la charge électrique d'un aérosol a été particulièrement caractérisé. Nous avons également étudié l'évolution de ces ions en dehors de la zone d'ionisation, notamment l'évolution du rapport des concentrations ioniques.

D'une façon générale, l'ensemble de nos résultats expérimentaux montre que les propriétés des ions, et donc le paramètre d'asymétrie, dépendent de l'intensité d'ionisation dans le milieu et du temps de résidence des ions dans la zone d'ionisation. Nous montrons ainsi que le paramètre d'asymétrie augmente avec la dose reçue par le milieu ionisé, celui-ci se rapprochant de l'unité pour les fortes doses. Nous montrons également que cette variation est due à l'évolution des mobilités électriques des ions formés pendant l'irradiation. En effet, nos résultats montrent que la mobilité des ions produits pour une forte dose d'irradiation est plus faible que celle obtenues pour une "faible dose" : les ions présents, ont donc une dimension plus grande. Ce résultat est cohérent avec les études réalisées sur le processus de nucléation par radiolyse et photolyse de l'air (Bricard *et al.* 1972, Perrin 1976, Madelaine *et al.* 1980), montrant une augmentation de la taille des noyaux de condensation avec le temps d'exposition aux rayonnements.

Par ailleurs, nos résultats expérimentaux et numériques obtenus sur l'évolution des concentrations ioniques en dehors de la zone d'ionisation, montrent l'importance de la variation du rapport des concentrations en ions positifs et négatifs pour la détermination du paramètre d'asymétrie, notamment au voisinage des parois.

## CHAPITRE III

### ETUDE EXPERIMENTALE DE LA CHARGE ELECTRIQUE DES AEROSOLS EN MILIEU FORTEMENT IONISE

#### I. Présentation de l'étude expérimentale

Il s'agit de mettre en œuvre une méthode de mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol. Pour cela, nous réalisons un dispositif expérimental permettant de produire un aérosol étalon, de l'introduire dans un milieu fortement ionisé et de mesurer sa charge électrique. Nous associons également à notre dispositif le système de mesure du paramètre d'asymétrie, pour établir une corrélation entre les deux types de mesures

##### I.1. *Principe de mesure de la distribution des charges électriques de l'aérosol*

Notre technique de mesure de la distribution des charges électriques utilise le principe de la sélection des particules en fonction de leurs mobilités électriques, puis de leur détection par un Compteur de Noyaux de Condensation (C.N.C.). L'avantage de cette méthode est de pouvoir réaliser une automatisation de la mesure à l'aide d'un ordinateur et d'une carte d'acquisition.

Rappelons brièvement le principe de fonctionnement de ces appareils.

- La sélection des particules en fonction de leur charge électrique

Pour sélectionner les particules, nous employons des Spectromètres de Mobilité Electrique Circulaire (S.M.E.C.) d'ordre 1 ou d'ordre 2, développés sur la base des travaux de Pourprix (1989) et qui ont fait l'objet d'études détaillées par Mesbah (1994). Nous utilisons principalement dans cette étude expérimentale, un analyseur d'ordre 1 pour des raisons de disponibilité du matériel.

Rappelons que ces appareils permettent de sélectionner les particules en fonction de leur mobilité électrique. Pour les utiliser en tant que spectromètre de charge électrique, l'aérosol doit donc être parfaitement monodispersé.

- La détection des particules

L'appareil que nous utilisons pour détecter les particules (CNC) permet de prélever un aérosol à un débit constant, et de déterminer sa concentration pour des valeurs comprises entre  $10^{-2}$  et  $10^7$  p.  $\text{cm}^{-3}$ . Les particules sont détectées grâce à la diffusion de la lumière provoquée lors de leur passage dans un volume de mesure illuminé par un faisceau de lumière blanche ou un laser. Cependant, compte tenu de la longueur d'onde des sources de lumières utilisables, les particules doivent avoir une taille minimale ( $\approx 0,3 \mu\text{m}$ ) pour interagir et diffuser suffisamment la lumière incidente. Pour que les particules de dimensions inférieures soient également détectables, l'aérosol est artificiellement grossit par condensation d'une vapeur d'alcool en passant successivement dans un saturateur et un condenseur (Bricard *et al.*, 1976).

Les compteurs de noyaux de condensation permettent ainsi de détecter des particules de dimensions comprises entre environ  $0,003 \mu\text{m}$  et  $3 \mu\text{m}$  (Wen et Kasper 1986, Quant *et al.* 1992). Signalons que ces compteurs détectent individuellement les particules lorsque leur concentration est inférieure à  $10^3$  p.  $\text{cm}^{-3}$ . En revanche, du fait des coïncidences dans le volume de mesure, les CNC mesurent uniquement l'intensité totale de la lumière diffusée pour des concentrations d'aérosols supérieures  $10^4$  p.  $\text{cm}^{-3}$ . Dans ce cas, le compteur nécessite un étalonnage (Liu et Pui, 1974b).

- La production d'aérosols monodispersés

Nous représentons dans l'annexe A les schémas des générateurs d'aérosols monodispersés que nous utilisons dans nos expériences. Présentons brièvement les différentes techniques que nous mettons en œuvre.

Nous utilisons dans nos expériences des aérosols composés de sphères de latex parfaitement monodispersées (coefficient de variation  $< 3 \%$ ). Ces aérosols sont produits en pulvérisant une solution contenant les sphères de latex en suspension. Cependant, cette méthode entraîne également la production d'un aérosol ultra-fin dont la concentration est généralement beaucoup plus élevée que celle des sphères de latex. Cet aérosol provient du résidu sec des gouttelettes de solution ne contenant pas de sphère de latex (Billard *et al.* 1970, Fuchs 1973). Signalons que cette méthode entraîne également la production d'agrégats issus



de l'agglomération entre plusieurs sphères dans la solution, ou bien de l'inclusion de plusieurs sphères dans une même goutte lors de la pulvérisation.

Afin d'éliminer ces aérosols "parasites" nous utilisons deux techniques différentes. La première, utilise un analyseur différentiel de mobilité électrique (TSI 3071) qui permet de sélectionner uniquement les particules dont la mobilité électrique correspond aux sphères de latex possédant une seule charge électrique positive. Nous obtenons ainsi un aérosol dont la dimension et la charge électrique sont uniformes. Par cette méthode, nous pouvons produire des aérosols de latex avec des dimensions comprises entre 0,1  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$  pour des concentrations allant jusqu'à  $10^4$  p.  $\text{cm}^{-3}$  et avec un débit d'environ 0,3 l/min. Nous utilisons ce système, notamment pour vérifier les fonctions de transfert de nos SMEC.

La deuxième méthode que nous utilisons pour éliminer l'aérosol parasite est basée sur les propriétés de diffusion des aérosols ultra fins. En effet, le diamètre de cet aérosol parasite est généralement inférieur à 0,05  $\mu\text{m}$ , il a donc un coefficient de diffusion important, et nous pouvons le piéger dans une batterie de diffusion (Billard *et al.*, 1970).

La batterie de diffusion que nous employons, similaire à celle commercialisée par TSI (modèle 3040), est composée d'un ensemble de 55 grilles. Lorsque toutes les grilles sont utilisées, le diamètre de coupure théorique de la batterie est d'environ 0,2  $\mu\text{m}$  pour un débit de 4 l/min (Cheng et Yeh, 1980). Ainsi, en ajustant le débit traversant la batterie nous pouvons éliminer totalement l'aérosol ultra fin et produire des aérosols monodispersés de latex de dimensions comprises entre 0,2  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$ , avec des concentrations allant jusqu'à  $10^4$  p.  $\text{cm}^{-3}$  et pour des débits de l'ordre de 2 l/min. Cependant, les agrégats de plusieurs sphères ne sont pas éliminés en utilisant cette technique, mais leur concentration est généralement très inférieure à celle de l'aérosol qu'on désire générer.

Soulignons, que ce système est plus facile à mettre en œuvre que l'analyseur différentiel de mobilité électrique. Par ailleurs, nous utilisons une source radioactive de  $^{85}\text{Kr}$  ayant une activité de 2 mCi en amont de la batterie de diffusion, afin de réduire les effets électrostatiques telle que la force image, sur la collection des particules par les grilles de diffusion (Billard *et al.*, 1970). En conséquence, la distribution des charges électriques de l'aérosol de latex est proche de l'équilibre de Boltzmann. Nous présentons les résultats de nos mesures dans l'annexe B, pour des aérosols de diamètres égaux à 0,2  $\mu\text{m}$  et 0,5  $\mu\text{m}$ .

- Le système d'acquisition des données

Nous mettons en œuvre dans nos expériences, un système d'acquisition des données permettant d'automatiser le fonctionnement de notre dispositif expérimental. Ce système est composé d'une carte d'acquisition reliée à un ordinateur. Il permet, d'une part, d'optimiser le temps de mesure de la distribution des charges électriques, d'autre part, de multiplier facilement le nombre de mesures afin de s'assurer de leur reproductibilité et d'obtenir des incertitudes sur les résultats.

Pour mesurer la distribution des charges électriques, nous développons un programme qui contrôle l'alimentation haute tension permettant d'appliquer le champ électrique dans le SMEC. Notre programme permet également d'enregistrer une série de concentrations mesurées par le CNC pour chaque valeur de la tension appliquée entre les électrodes du SMEC. Nous pouvons ainsi déterminer une moyenne et un écart type sur la mesure. Par la suite, en utilisant la loi de propagation des erreurs nous déterminons des incertitudes sur la distribution des charges puis sur la charge moyenne obtenue expérimentalement.

## *1.2. Dispositif expérimental pour mesurer la distribution des charges électriques avec un SMEC d'ordre 1*

- Schéma du dispositif expérimental

Nous représentons sur la figure 3.1 le dispositif expérimental que nous réalisons pour mesurer la distribution des charges électriques d'un aérosol monodispersé, en utilisant un analyseur de mobilité électrique d'ordre 1.

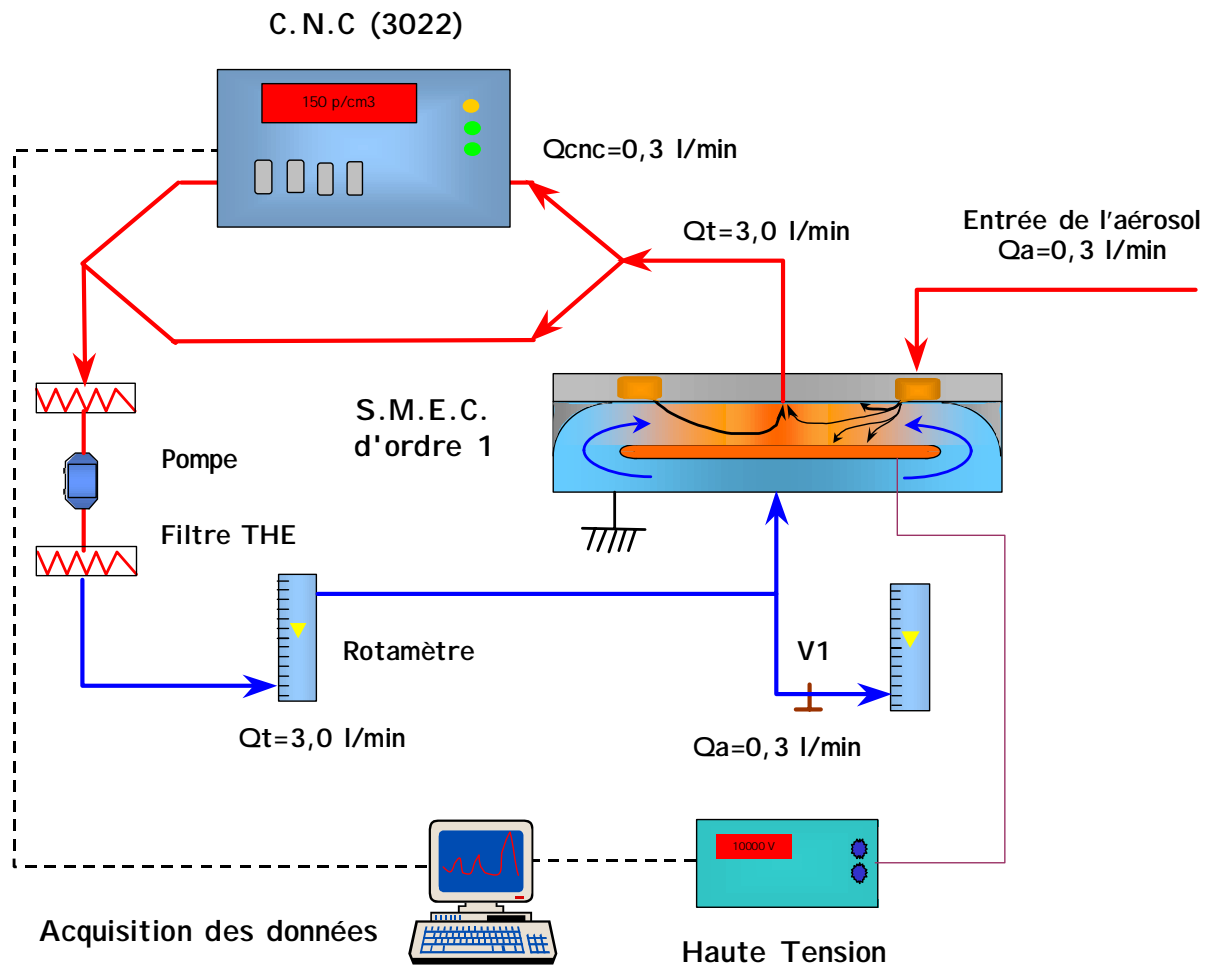


Figure 3.1 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution des charges électriques avec un analyseur de mobilité d'ordre 1.

Rappelons que l'analyseur d'ordre 1 est de type intégrateur. Il sélectionne donc toutes les particules dont la mobilité est inférieure à sa mobilité critique, les particules de mobilités supérieures étant collectées sur l'électrode de polarisation. Par ailleurs, les particules positives et négatives sont analysées distinctement suivant la polarisation de l'électrode interne. En effet, les particules ayant une charge du même signe que cette électrode sont toutes collectées par l'électrode de masse du système. La concentration des particules sélectionnées par le SMEC est ensuite déterminée par le CNC.

Lorsque le champ électrique dans le SMEC est nul, nous mesurons la concentration totale de l'aérosol. En revanche, lorsque le champ électrique dépasse la valeur critique

permettant de collecter les particules ayant la plus faible mobilité électrique ( $\pm 1$  charge), nous mesurons la concentration des particules neutres.

La circulation de l'air filtré nécessaire au fonctionnement du SMEC est obtenue grâce à une pompe à palette. Le débit de cette pompe est contrôlé par sa vitesse de rotation, ce qui permet d'éviter les pertes de charges dans le circuit et ainsi la variation du débit volumique total dans le circuit fermé. Par ailleurs, l'utilisation d'un circuit d'air fermé facilite le contrôle du débit d'aérosol entrant ( $Q_a$ ) dans le système, en mesurant le débit de fuite créé dans le circuit. Nous mesurons ce débit et le débit total ( $Q_t$ ) à l'aide de débitmètres volumiques étalonnés.

Ces débits sont fixés en fonction du diamètre des particules à analyser et de la résolution souhaitée. Pour notre application, la résolution de l'appareil correspond au nombre maximum de charges électriques qu'on peut discriminer. Ainsi avec un rapport entre  $Q_t$  et  $Q_a$  égal à 10, nous pouvons analyser des particules portant jusqu'à 4 charges élémentaires. Nous utilisons généralement des débits  $Q_t$  et  $Q_a$  respectivement égaux à 3 et 0,3 l/min.

L'avantage principal de cette méthode de mesure est de pouvoir déterminer la concentration totale de l'aérosol puis celle des particules neutres, sans modifier l'écoulement aérodynamique dans le SMEC. En revanche, cette méthode entraîne une dilution de l'aérosol avant sa détection par le CNC, qui est fonction du rapport entre les débits  $Q_t$  et  $Q_a$ .

Signalons, par ailleurs, que pour réaliser une mesure de concentration représentative avec le CNC, l'aérosol doit être dilué de façon homogène dans le conduit d'échantillonnage en amont du CNC. Or, du fait de la géométrie circulaire du SMEC, l'aérosol monodispersé est réparti suivant des anneaux concentriques à la sortie de l'analyseur. Nous avons constaté cet effet aux début de nos expériences, lors de la vérification de la fonction de transfert du SMEC. Pour obtenir une répartition homogène de l'aérosol sur une courte distance, nous intégrons alors dans le conduit d'échantillonnage des éléments permettant le bon mélange de celui-ci.

- Mesure de la distribution en mobilités de l'aérosol

Nous présentons sur la figure 3.2 un exemple de mesure de la distribution cumulée en mobilités d'un aérosol de sphères de latex de diamètre égal à 0,30  $\mu\text{m}$ . Cette distribution est obtenue après son passage dans un milieu contenant des ions bipolaires créés par une source

radioactive de 2 mCi de  $^{85}\text{Kr}$ . Nous représentons sur cette figure la concentration cumulée des particules mesurées par le CNC ( $C_{\text{mes}}$ ) en fonction de la tension appliquée entre les électrodes du SMEC. Nous normalisons cette concentration par rapport à la concentration totale de l'aérosol ( $C_t$ ). Nous représentons également l'écart type sur la concentration normalisée, déterminé à partir des écarts types sur les mesures des concentrations cumulées et totale.

Afin de comparer facilement les distributions positives et négatives, nous représentons celles-ci sur une même abscisse. Bien entendu, l'analyse des particules positives et négatives est effectuée pour des polarisations respectivement négatives et positives de l'électrode interne du SMEC.

Nous constatons sur la figure 3.2 que les distributions cumulées positives et négatives sont différentes, la distribution cumulée négative étant supérieure. Nous pouvons donc déjà déduire que la distribution des charges électriques n'est pas symétrique et qu'elle est décalée vers des valeurs négatives.

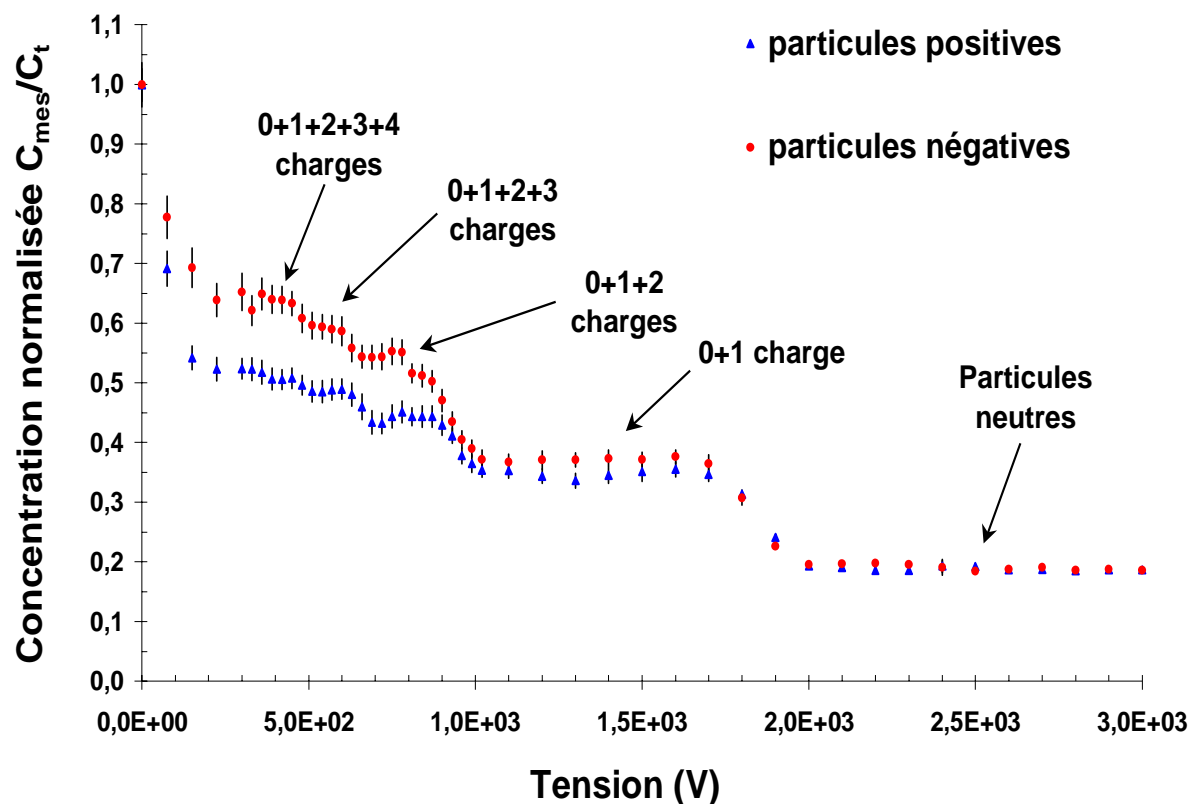


Figure 3.2 - Distributions cumulées en mobilités électriques obtenue pour un aérosol monodispersé de diamètre égal à  $0,30 \mu\text{m}$  avec un SMEC d'ordre 1.

- Détermination de la distribution des charges électriques de l'aérosol

Il est facile d'obtenir la distribution des charges électriques de l'aérosol à partir de la distribution cumulée en mobilités. En effet, il suffit de soustraire successivement les concentrations cumulées pour obtenir les différentes fractions de particules chargées positivement ou négativement.

### I.3. Dispositif expérimental pour mesurer la distribution des charges électriques avec un SMEC d'ordre 2

- Schéma du dispositif expérimental

Nous représentons sur la figure 3.3 le dispositif expérimental que nous réalisons pour mesurer la distribution des charges électriques d'un aérosol monodispersé avec un analyseur de mobilité électrique d'ordre 2.

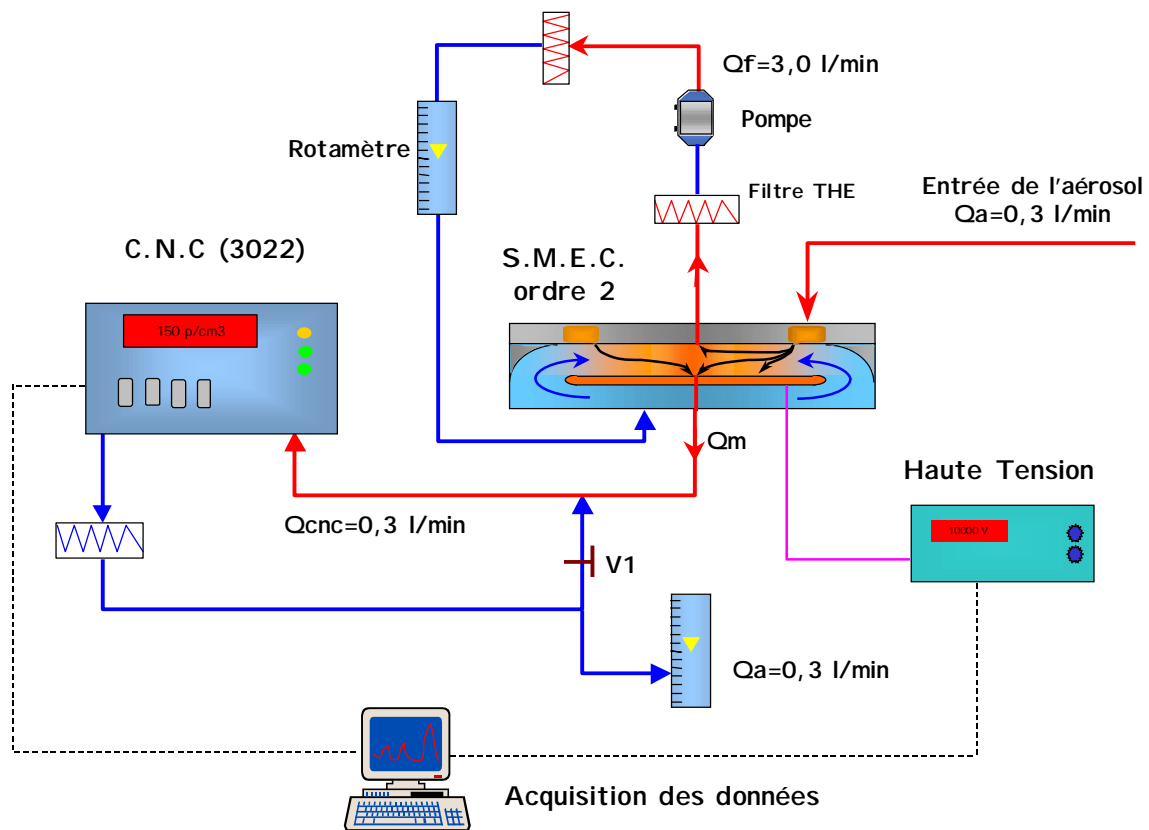


Figure 3.3 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol avec un analyseur de mobilité d'ordre 2.

Le SMEC différentiel permet de sélectionner uniquement les particules chargées. En faisant varier la tension entre les électrodes de l'analyseur, nous sélectionnons successivement les particules portant  $\pm 1$ ,  $\pm 2$ ,  $\pm 3$  ou  $\pm 4$  charges élémentaires suivant la polarisation positive ou négative de l'électrode interne. La concentration de l'aérosol sélectionné est ensuite déterminée à l'aide du CNC.

Lorsque le débit d'aérosol entrant dans l'analyseur ( $Q_a$ ) est égal au débit d'extraction ( $Q_m$ ), le maximum de la fonction de transfert correspond à une probabilité d'extraction de l'aérosol égale à 1 (fig. 1.14). En conséquence, la concentration mesurée au maximum de la fonction de transfert correspond à la concentration effective des particules sélectionnées.

L'avantage de ce système de mesure est de ne pas diluer l'aérosol avant sa détection, ce qui facilite l'analyse des aérosols faiblement concentrés.

Les débits de fonctionnement ( $Q_a$  et  $Q_f$ ) du système sont fixés en fonction du diamètre des particules à analyser et de la résolution souhaitée. Le débit d'air filtré ( $Q_f$ ) est contrôlé et mesuré à l'aide d'une pompe à palette et d'un débitmètre. Afin de pouvoir faire varier le débit d'aérosol entrant dans l'analyseur ( $Q_a$ ) et de conserver l'égalité avec le débit d'aérosol extrait ( $Q_m$ ), nous installons une boucle de fuite en aval du CNC (fig. 3.3).

Lorsque le débit d'aérosol entrant ( $Q_a$ ) est égal au débit d'aérosol extrait ( $Q_m$ ), la résolution de l'analyseur s'exprime alors par la relation (Knutson, 1976) :

$$\text{Res} = 1 - \frac{2 \cdot Q_a}{Q_a + Q_f} \quad (3.1)$$

Le nombre maximum de charges élémentaires  $j_{\max}$  pouvant être discriminé est déterminé par la relation :

$$j_{\max} = \frac{\text{Res}}{1 - \text{Res}} \quad (3.2)$$

Ainsi lorsque le rapport entre  $Q_f$  et  $Q_a$  est égal à 10 nous pouvons analyser des particules portant jusqu'à 4 charges élémentaires.

- Mesure de la distribution en mobilités de l'aérosol

Nous présentons sur la figure 3.4 un exemple de mesure de la distribution en mobilités d'un aérosol de sphères de latex de diamètre égal à  $0,20 \mu\text{m}$ , après son passage dans un milieu contenant des ions bipolaires créés par une source radioactive. Nous représentons la concentration des particules en fonction de la tension appliquée entre les électrodes du SMEC, ainsi que l'écart type sur la mesure de cette concentration.

Les données relatives aux particules positives et négatives sont encore représentées sur une même abscisse. Mais bien entendu, ces mesures sont effectuées pour des polarisations respectivement négatives et positives de l'électrode interne du SMEC.

Nous constatons, sur la figure 3.4, que les distributions en mobilités électriques obtenues pour les particules positives et négatives sont différentes. Nous obtenons des concentrations en particules négatives supérieures à celles des particules positives. Ces résultats confirment ceux obtenus avec le SMEC d'ordre 1 pour un aérosol de  $0,30\mu\text{m}$ .

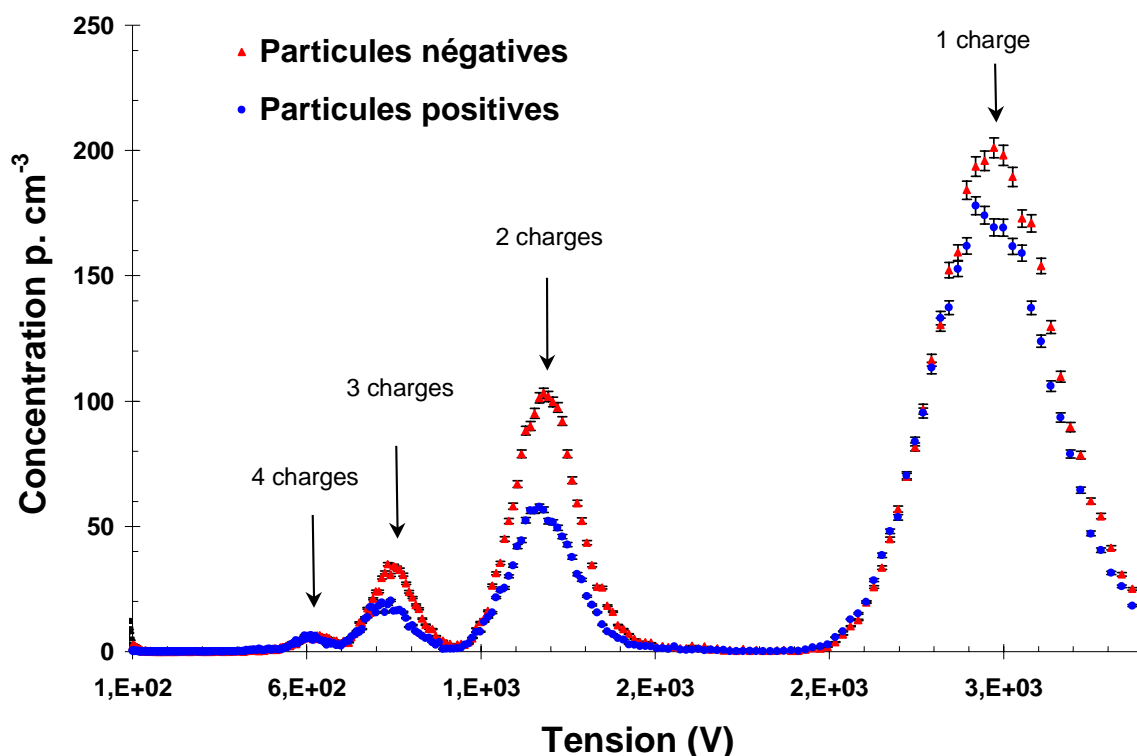


Figure 3.4 - Distributions en mobilités électriques obtenues pour un aérosol monodispersé de diamètre égal à  $0,20 \mu\text{m}$  avec un SMEC d'ordre 2.



Par la suite, nous cherchons à optimiser le temps nécessaire à l'obtention de la distribution en mobilité électrique avec un SMEC différentiel, ceci afin d'appliquer notre méthode à l'étude des aérosols radioactifs. Pour diminuer ce temps d'analyse, nous effectuons le comptage des particules sélectionnées une par une, en analysant directement le signal fourni par le photodétecteur du CNC. Cette méthode a l'avantage d'être indépendante du temps de réponse du CNC.

Nous obtenons ensuite la concentration des particules sélectionnées en effectuant le rapport entre le nombre de particules comptées et le volume analysé pendant le temps de comptage. L'incertitude sur la concentration est alors déterminée en fonction de l'incertitude statistique du comptage et de l'incertitude sur le débit d'analyse.

- Détermination de la distribution des charges électriques de l'aérosol

L'obtention de la distribution des charges électriques avec un analyseur différentiel de mobilité électrique est plus complexe qu'avec un analyseur d'ordre 1. Bien que l'analyseur différentiel permette d'obtenir facilement les concentrations des particules chargées, il est moins commode d'obtenir celle des particules neutres. En effet, pour obtenir la concentration de particules neutres et la concentration totale de l'aérosol, il est nécessaire de modifier l'écoulement dans l'analyseur en supprimant le débit d'air filtré  $Q_f$ . De cette façon, il n'y a que le débit d'aérosol  $Q_a$  qui circule entre les électrodes, et le système fonctionne alors comme un analyseur d'ordre 0.

Lorsque la tension est nulle nous mesurons donc la concentration totale de l'aérosol, et lorsque la tension est supérieure à la tension critique permettant de collecter les particules ayant la plus faible mobilité, nous obtenons la concentration des particules neutres. A l'aide de ces mesures complémentaires, nous pouvons alors déterminer la distribution des charges électriques de l'aérosol.

#### *I.4. Comparaison des systèmes de mesure utilisant les SMEC d'ordre 1 et 2*

Pour comparer nos deux méthodes de mesure, nous déterminons la distribution des charges électriques d'un aérosol, avec nos deux dispositifs expérimentaux dans les mêmes conditions de fonctionnement. Pour cela, nous utilisons deux aérosols de sphères de latex de diamètres égaux à  $0,20 \mu\text{m}$  et  $0,50 \mu\text{m}$ . Le neutraliseur employé pour obtenir la distribution

des charges, est une source de 2 mCi de  $^{85}\text{Kr}$ . Le débit et la concentration de l'aérosol sont maintenus constants entre les différentes expériences. Nous représentons, dans l'annexe B les distributions des charges obtenues dans chacun des cas. Les deux méthodes de mesure donnent des résultats similaires. Toutefois, nous constatons que le SMEC différentiel permet d'obtenir une meilleure précision pour la mesure des concentrations des particules portant des charges multiples.

## II. Mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol obtenue avec une source alpha

### II.1. Dispositif expérimental

Pour ces expériences, nous utilisons le conduit cylindrique précédemment décrit dans le chapitre 2 avec les 4 sources d'Américium 241. La figure 3.5 schématise l'ensemble de notre dispositif expérimental.

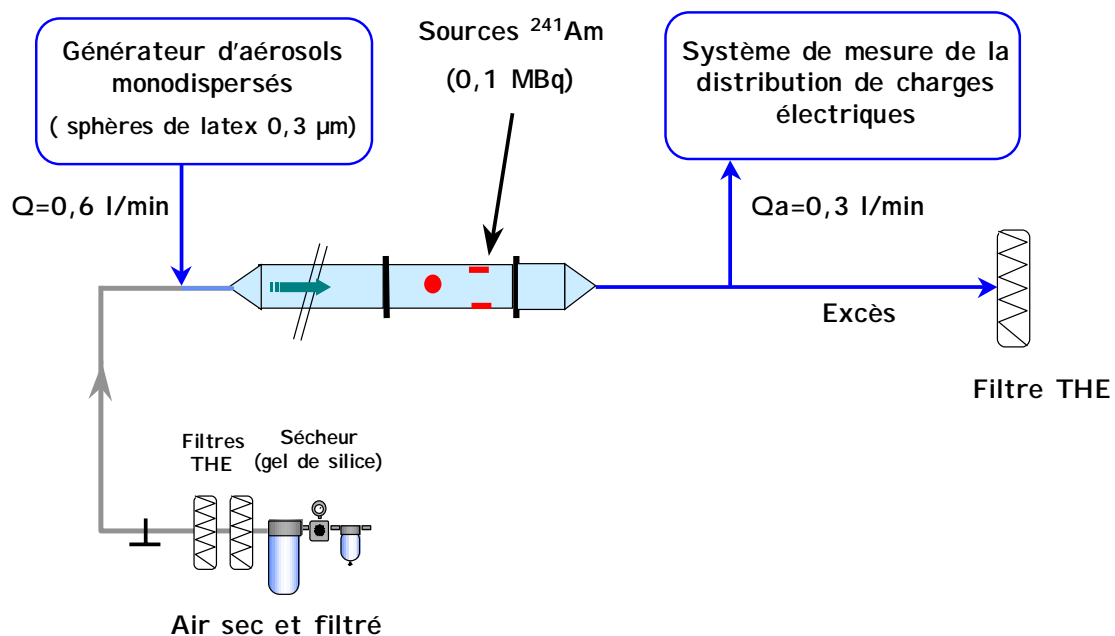


Figure 3.5 - Dispositif expérimental pour la mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol obtenue avec une source alpha.

L'aérosol monodispersé est injecté en amont du conduit cylindrique principal, dans un tuyau de 6 mm de diamètre. Il est dilué avec de l'air propre et sec, afin d'obtenir un débit équivalent à celui utilisé dans le conduit pour la mesure du paramètre d'asymétrie réalisée dans le chapitre 2 (fig 2.5), soit 15 l/min.

Le prélèvement de l'aérosol s'effectue à l'extrémité du conduit principal, à un débit de 0,3 l/min. Par ailleurs, nous supposons que la distribution des charges électriques de l'aérosol n'évolue quasiment pas pendant son échantillonnage vers le système de mesure car la concentration des petits ions diminue très rapidement dans le conduit de prélèvement du fait de leur recombinaison et de leur diffusion. En conséquence, le temps de relaxation électrique de l'aérosol devient beaucoup plus important que le temps d'échantillonnage, et la distribution des charges électriques se trouve ainsi "figée" (Pourprix, 1973).

## II.2. Résultats

Nous mesurons la distribution des charges électriques obtenue pour un aérosol monodispersé de diamètre égal à  $0,30 \mu\text{m}$  et dont la concentration est égale à  $520 \text{ p. cm}^{-3}$ . Cet aérosol étant produit par un pulvérisateur et un classificateur électrostatique, sa charge électrique initiale est donc uniforme, toutes les particules possèdent une seule charge élémentaire positive.

Nous représentons sur la figure 3.6 la distribution des charges électriques obtenue expérimentalement, ainsi que les incertitudes sur nos résultats avec un intervalle de confiance de 95 %. Nous représentons également sur cette figure les distributions des charges électriques déterminées, d'une part, par l'équilibre de Boltzmann (eq. 1.39), d'autre part, par l'équation de Clement et Harrison (1991a) (eq. 1.45). Ces distributions sont normalisées par rapport à la concentration totale de l'aérosol ( $C_t$ ). Elles représentent donc les différentes fractions de l'aérosol en fonction du nombre de charges élémentaires portées par les particules.

Pour représenter l'équation de Clement et Harrison nous utilisons la valeur du paramètre d'asymétrie  $X=0,72$ , que nous avons déterminée expérimentalement dans le chapitre 2 (fig 2.5), dans les mêmes conditions que pour la mesure de la distribution des charges électriques de l'aérosol.

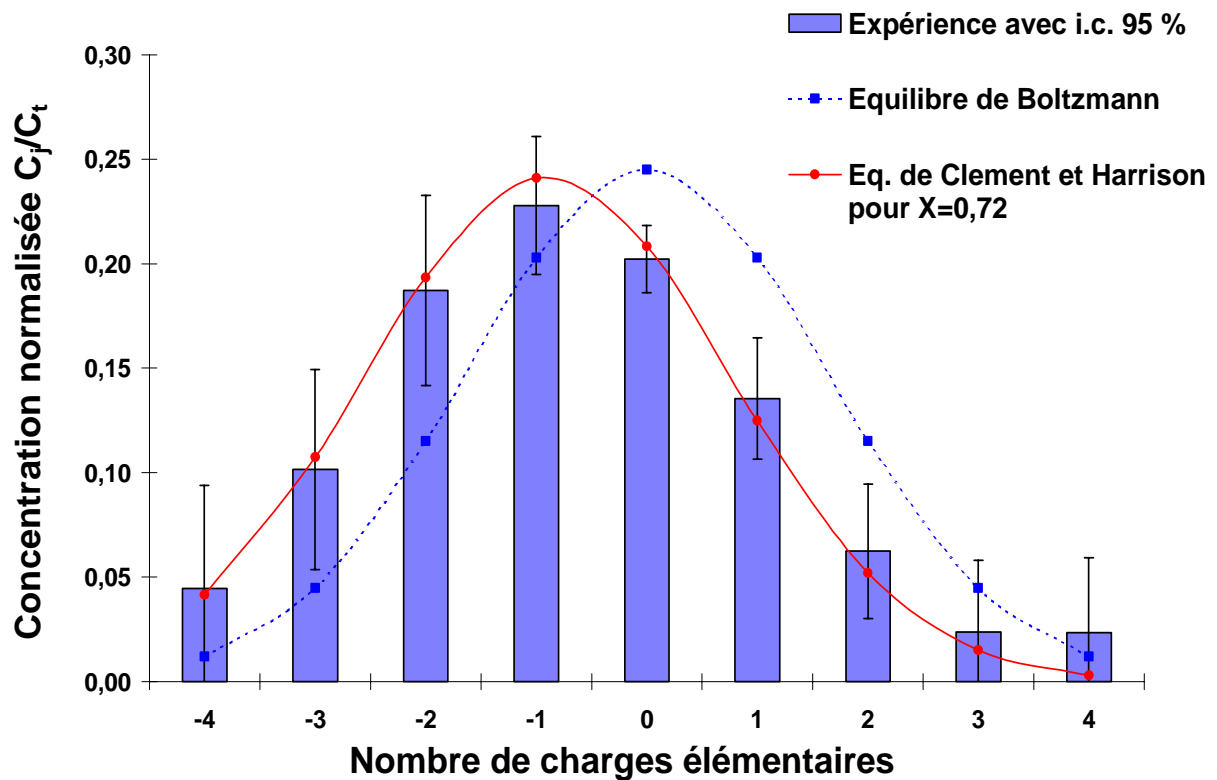


Figure 3.6 - Distribution des charges électriques pour un aérosol monodispersé de diamètre égal à 0,30  $\mu\text{m}$ .

Nous remarquons qu'il existe une différence notable entre la distribution des charges électriques déterminée par la loi d'équilibre de Boltzmann et nos résultats expérimentaux. En revanche, le modèle de Clement et Harrison (1991a) prenant en compte le paramètre d'asymétrie, est en bon accord avec nos résultats.

Calculons la charge moyenne  $\bar{J}$  de l'aérosol. Elle est déterminée en fonction des fractions de particules portant  $j$  charges élémentaires ( $C_j/C_t$ ) par la relation :

$$\bar{J} = \frac{\sum_j j \cdot C_j / C_t}{\sum_j C_j / C_t} \times e. \quad (3.3)$$

Pour la distribution représentée figure 3.6, nous obtenons une charge moyenne égale à  $-0,66 e$ . L'écart type associé à cette valeur est calculé à partir des incertitudes sur chaque fraction et est égal à  $0,16 e$ . Par ailleurs, la charge moyenne calculée à partir de l'équation de Clement et Harrison est égale à  $-0,88 e$ . Bien que pour un intervalle de confiance de 95 %, la charge moyenne déterminée expérimentalement soit en accord avec la valeur théorique, il existe néanmoins un écart relatif de 25 % entre ces deux valeurs. Nous supposons que cet écart provient en partie des incertitudes importantes sur la mesure des fractions de particules portant respectivement  $+4$  et  $-4$  charges élémentaires. Pour vérifier cette hypothèse, nous négligeons dans le calcul de la charge moyenne les particules portant plus de 3 charges élémentaires. Les charges moyennes déterminées expérimentalement et théoriquement dans ces conditions sont respectivement égales à  $-0,61 e$  et  $-0,72 e$ , l'écart relatif se réduit alors à 15 %.

### *II.3. Evolution de la distribution des charges de l'aérosol dans un conduit cylindrique en aval d'une source d'ions*

Nous avons montré dans le chapitre 2 que l'évolution des concentrations en ions positifs et négatifs en aval d'une source d'ions est différente, le rapport entre ces concentrations n'étant pas constant. Pour mettre en évidence l'influence de ce rapport sur la distribution des charges électriques d'un aérosol, nous mesurons celle-ci pour plusieurs distances entre la zone d'ionisation et l'extrémité de notre conduit cylindrique.

Pour cela, nous utilisons le dispositif expérimental de la figure 3.5 et nous faisons varier la longueur du conduit principal en aval de la source d'ions. Dans ces expériences, nous utilisons le SMEC différentiel pour mesurer la distribution des charges électriques et un pulvérisateur associé à une batterie de diffusion pour produire l'aérosol monodispersé. Celui-ci à un diamètre égal à  $0,30 \mu\text{m}$  et une concentration de  $800 \text{ p. cm}^{-3}$ . Par ailleurs, le débit dans le conduit principal est égal à  $3 \text{ l/min}$ , ce qui nous permet d'obtenir un temps de résidence des ions et de l'aérosol suffisant pour que la charge électrique puisse évoluer notablement, compte tenu du temps de relaxation électrique important lorsque les concentrations en ions sont faibles.

Nous représentons sur les figures 3.7 et 3.8 les distributions des charges électriques obtenues respectivement pour des distances aval de la zone d'ionisation de  $5 \text{ cm}$  et de  $327 \text{ cm}$ . Nos résultats sont représentés avec un intervalle de confiance égal à 95%.

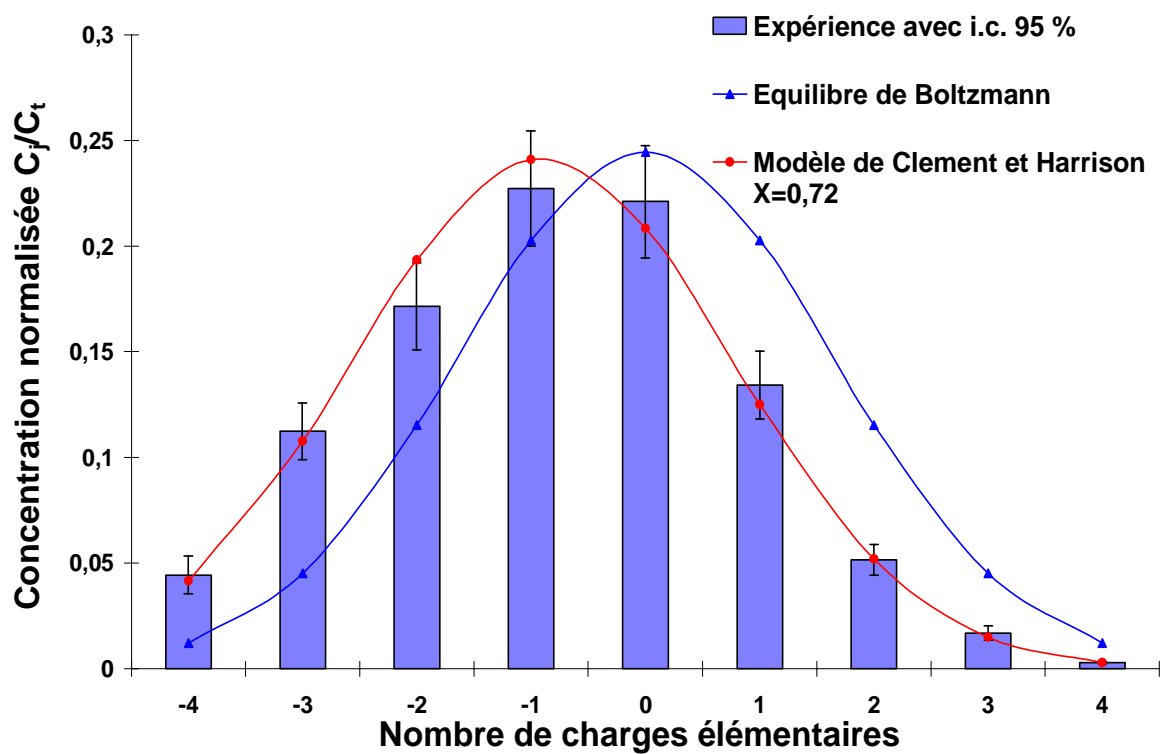


Figure 3.7 - Distribution des charges électriques à 5 cm en aval de la source d'ions.

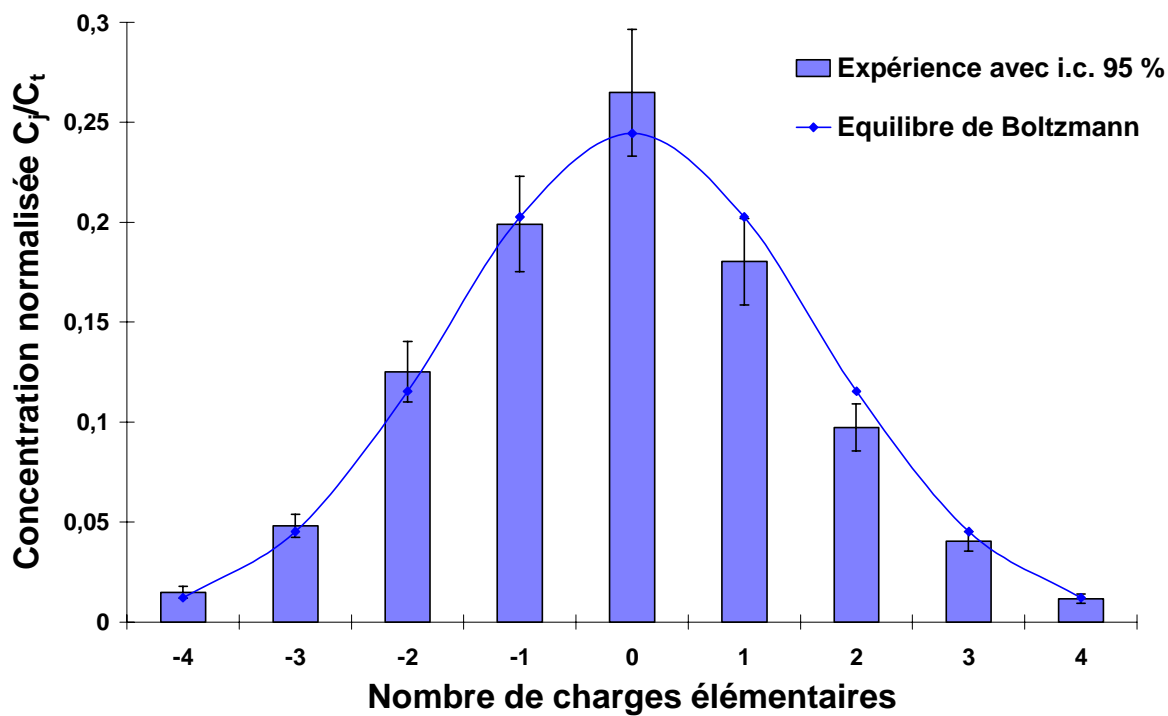


Figure 3.8 - Distribution des charges électriques à 327 cm en aval de la source d'ions.

Nous remarquons que la distribution des charges électriques obtenue à 5 cm en aval de la source d'ions (fig 3.7) est similaire à celle obtenue précédemment (fig. 3.6) avec le système de mesure utilisant le SMEC d'ordre 1. Nous remarquons que le modèle de Clement et Harrison (1991b) représente bien cette distribution pour un paramètre d'asymétrie égal à 0,72. La charge moyenne expérimentale est égale à  $-0,79 e$  avec un écart type de  $0,08 e$ , tandis que la charge moyenne donnée par le modèle de Clement et Harrison est égale à  $0,88 e$ .

En revanche, la distribution des charges obtenue à une distance de 327 cm est significativement différente, et nous constatons qu'elle est très proche de l'équilibre de Boltzmann. Néanmoins, la charge moyenne de l'aérosol reste légèrement négative, elle est égale à  $-0,11 e$ .

Pour synthétiser nos différents résultats expérimentaux, nous représentons sur la figure 3.9 l'évolution de la charge moyenne de l'aérosol en fonction de la distance en aval de la source d'ions. Nos résultats sont représentés avec un intervalle de confiance égal à 95 %, le diamètre de l'aérosol est toujours  $0,30 \mu\text{m}$  et le débit dans le conduit est égal à 3 l/min. Nous représentons également sur la figure 3.9, le temps moyen d'évolution de l'aérosol en aval de la source d'ions.

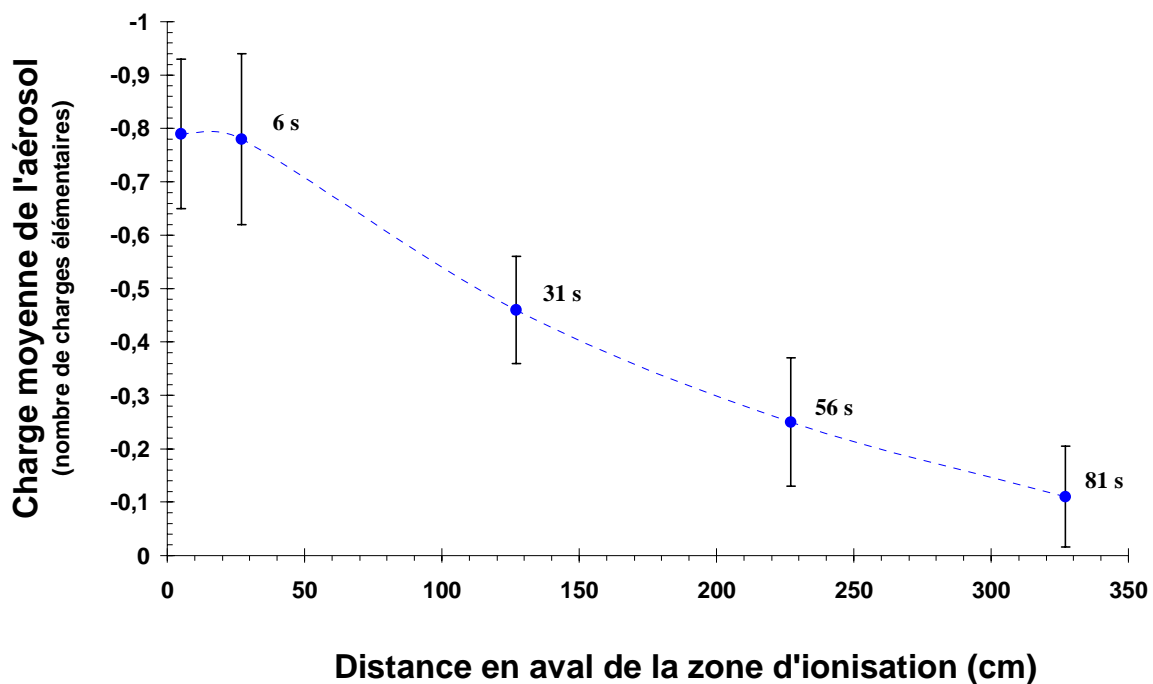


Figure 3.9 - Evolution de la charge moyenne d'un aérosol de diamètre égal à  $0,30 \mu\text{m}$  en aval d'une source d'ions.

Nous remarquons sur cette figure une variation significative de la charge moyenne de l'aérosol en aval de la zone d'ionisation. Cette charge se rapproche de zéro et la distribution des charges électriques tend alors vers l'équilibre de Boltzmann comme le montre la figure 3.8. Nous pouvons expliquer qualitativement ces résultats par la variation du rapport entre les concentrations en ions positifs et négatifs que nous avons mise en évidence dans le chapitre 2. Toutefois, nous ne représentons pas sur la figure 3.9, le modèle théorique en fonction des résultats expérimentaux présentés dans le chapitre 2, car ces derniers sont obtenus pour un débit différent dans le conduit et donc pour un temps d'évolution différent.

Rappelons que nous avons montré dans le chapitre 2, grâce à nos calculs numériques, qu'il existe également une variation du rapport des concentrations ioniques au voisinage de la paroi du conduit cylindrique. Afin de confirmer l'influence de cette variation sur l'état de charge électrique de l'aérosol, nous effectuons plusieurs mesures locales à l'aide d'une sonde de prélèvement positionnée, soit au centre du conduit, soit au voisinage de la paroi. Nous schématisons sur la figure 3.10 les deux zones de prélèvement de l'aérosol, elles correspondent à la surface des tubes des lignes de courant échantillonnées.

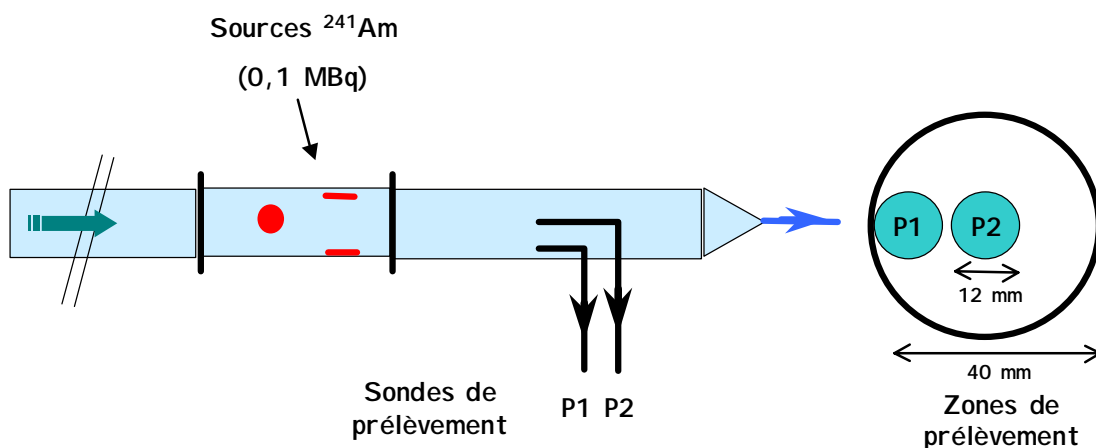


Figure 3.10 - Schéma du dispositif expérimental pour la mesure locale de la charge électrique de l'aérosol.



Nous représentons sur la figure 3.11 l'évolution de la charge électrique moyenne de l'aérosol prélevé au centre du conduit ou bien au voisinage de la paroi. Nos expériences sont toujours réalisées avec un débit de 3 l/min dans le conduit et pour des particules de 0,30  $\mu\text{m}$ . Les données sont représentées avec un intervalle de confiance égal à 95 %.

Nous remarquons, de façon analogue aux résultats précédents (fig. 3.9), que la charge moyenne évolue et se rapproche de zéro lorsque l'aérosol s'éloigne de la source d'ions. Nous remarquons par ailleurs, que la charge moyenne obtenue au centre du conduit est toujours algébriquement inférieure à celle obtenue au voisinage de la paroi. Nous remarquons également que cette différence n'est pas constante, elle augmente lorsque l'aérosol s'éloigne de la source d'ions.

Là encore, ces résultats sont qualitativement en accord avec nos résultats numériques présentés dans le chapitre 2. En effet, nous avons montré que le rapport entre les concentrations ioniques ( $n_+/n_-$ ) est plus important au voisinage de la paroi qu'au centre du conduit (fig. 2.13). En conséquence, le paramètre d'asymétrie augmente au voisinage de la paroi et la charge moyenne se rapproche de zéro. Nous mesurons même une charge moyenne légèrement positive pour une distance égale à 327 cm.

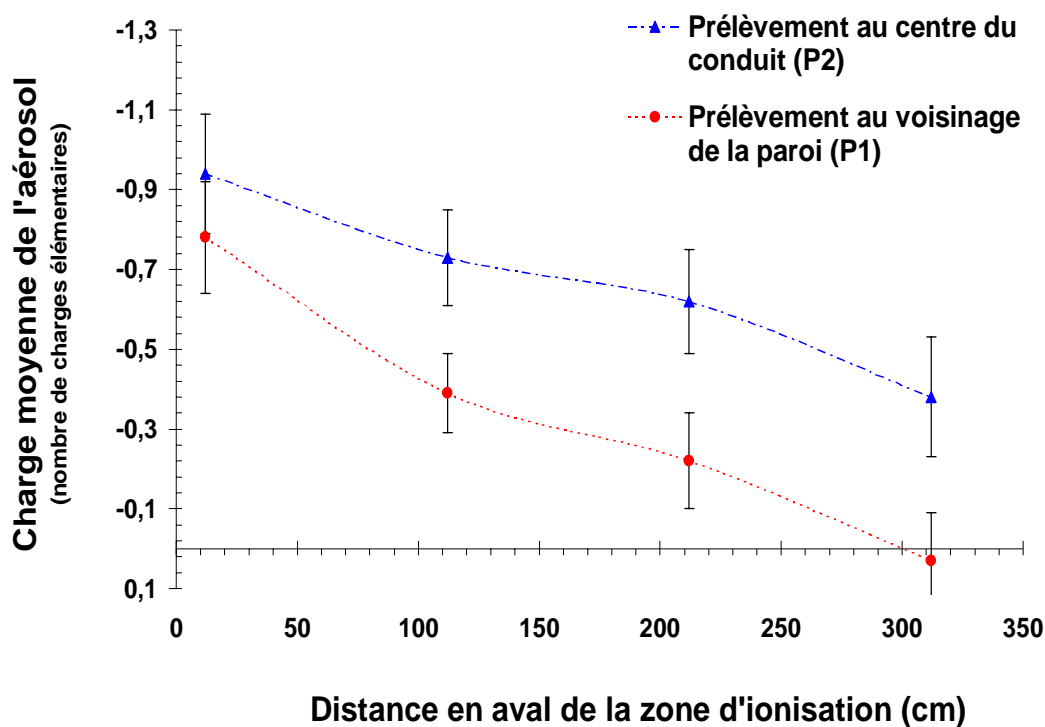


Figure 3.11 - Evolution de la charge moyenne de l'aérosol au centre du conduit et au voisinage de la paroi en aval d'une source d'ions.

### **III. Mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol obtenue par irradiation gamma**

#### *III.1. Dispositif expérimental*

Dans le chapitre 2, nous avons mis en évidence une variation du paramètre d'asymétrie en fonction de l'intensité d'ionisation et donc de la dose reçue dans un volume d'échantillonnage. Afin de déterminer l'influence de cette variation sur la charge électrique d'un aérosol, nous associons notre système de production d'aérosol monodispersé et notre système de mesure de la distribution des charges électriques avec le dispositif de mesure du paramètre d'asymétrie représenté sur la figure 2.14.

Nous représentons sur la figure 3.12 notre dispositif expérimental. Le système de production d'aérosols est composé d'un pulvérisateur et d'un classificateur électrostatique, le système de mesure de la charge électrique des aérosols comporte un SMEC d'ordre 1 et un CNC. Ces systèmes sont situés à l'extérieur de la cellule d'irradiation.

L'aérosol monodispersé est dilué pour obtenir un débit d'environ 20 l/min, puis il est introduit dans un volume d'échantillonnage situé à l'intérieur de la cellule d'irradiation où il est exposé au rayonnement gamma. Le système de mesure du paramètre d'asymétrie est connecté en série sur le conduit d'échantillonnage de l'aérosol. Ce système est toujours protégé du rayonnement gamma par un château de plomb d'une épaisseur de 10 cm. L'aérosol ressort ensuite de la cellule, puis une fraction est prélevée à un débit de 0,3 l/min pour l'analyse de la distribution des charges électriques.

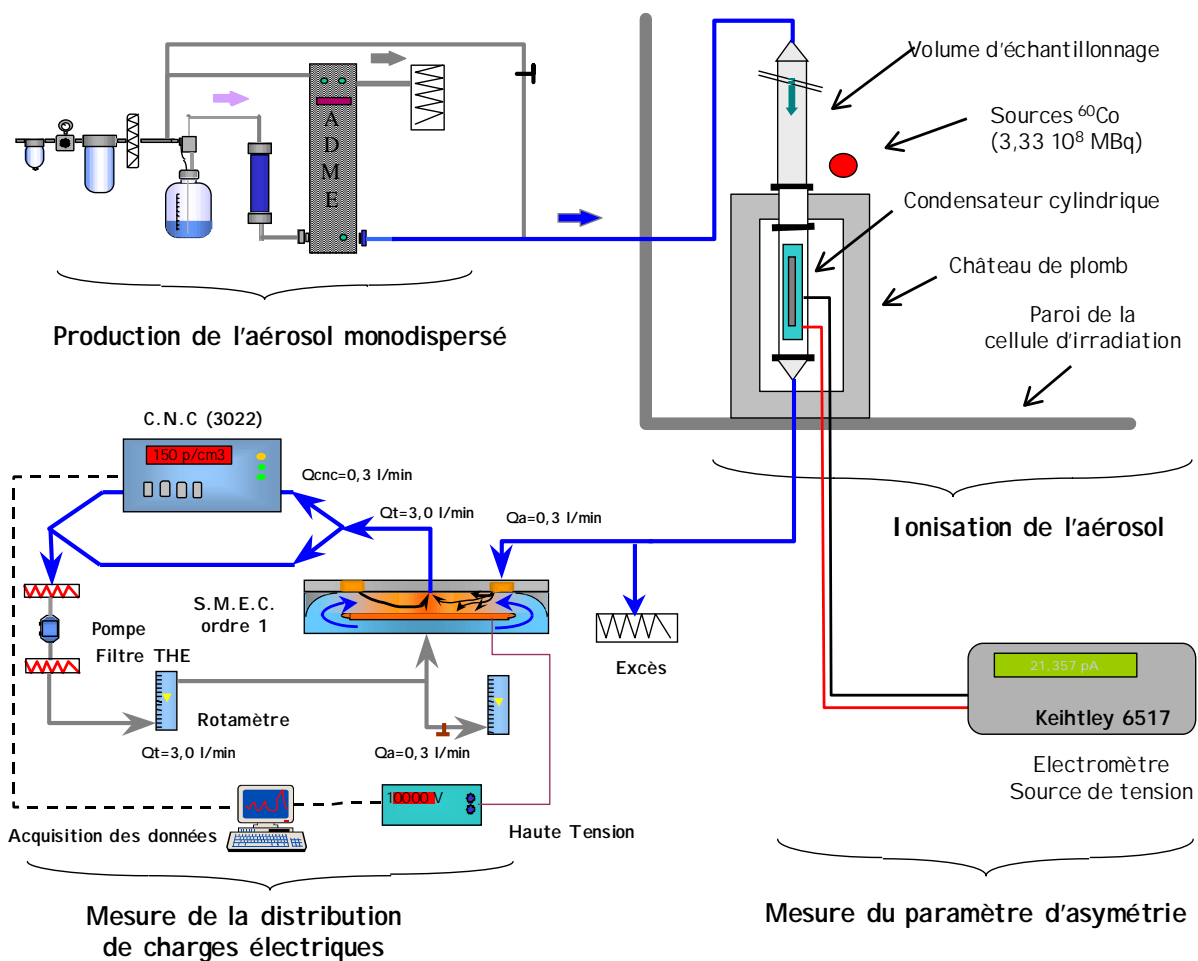


Figure 3.12 - Schéma du dispositif expérimental pour mesurer la charge électrique des aérosols en milieu fortement ionisé.

Lors de la qualification de notre dispositif expérimental, nous avons remarqué pour les forts débits de dose (supérieurs à 1 kGy/h), la production d'un aérosol dû à la radiolyse de l'air. Ce phénomène a déjà été mis en évidence et étudié par plusieurs auteurs (Bricard *et al.* 1972, Madelaine *et al.* 1980). Nous constatons à l'aide d'un CNC que la concentration de cet aérosol varie en fonction du débit de dose et du temps de résidence de l'air dans le volume d'échantillonnage, et qu'elle peut dépasser  $10^7$  p.  $\text{cm}^{-3}$ . Par ailleurs, nous vérifions que les particules ainsi produites sont neutres, conformément aux résultats déjà obtenus par Madelaine (1968). En effet, à l'aide du SMEC et du CNC nous déterminons facilement la fraction de

particules neutre par rapport à la concentration totale, et mesurons ainsi une proportion de particules neutres supérieure à 99 %.

Comme la concentration de cet aérosol "parasite" issu de la radiolyse varie en fonction du temps d'exposition de l'air aux rayonnements, nous effectuons nos expériences avec un débit dans le volume d'échantillonnage suffisamment élevé pour que la concentration de cet aérosol soit négligeable. Néanmoins, il existe probablement toujours une production de ces particules, mais elles sont soit éliminées par leur diffusion sur les parois avant d'arriver dans le système de mesure, soit non détectées par le CNC car elles sont trop petites. En effet, le CNC que nous utilisons (TSI, modèle 3022) a une efficacité de détection de 50 % pour des particules de 7 nm, et pour les particules plus petites, cette efficacité est quasiment nulle (Wen et Kasper, 1986).

Nous présentons sur la figure 3.13 une photographie de notre dispositif expérimental.

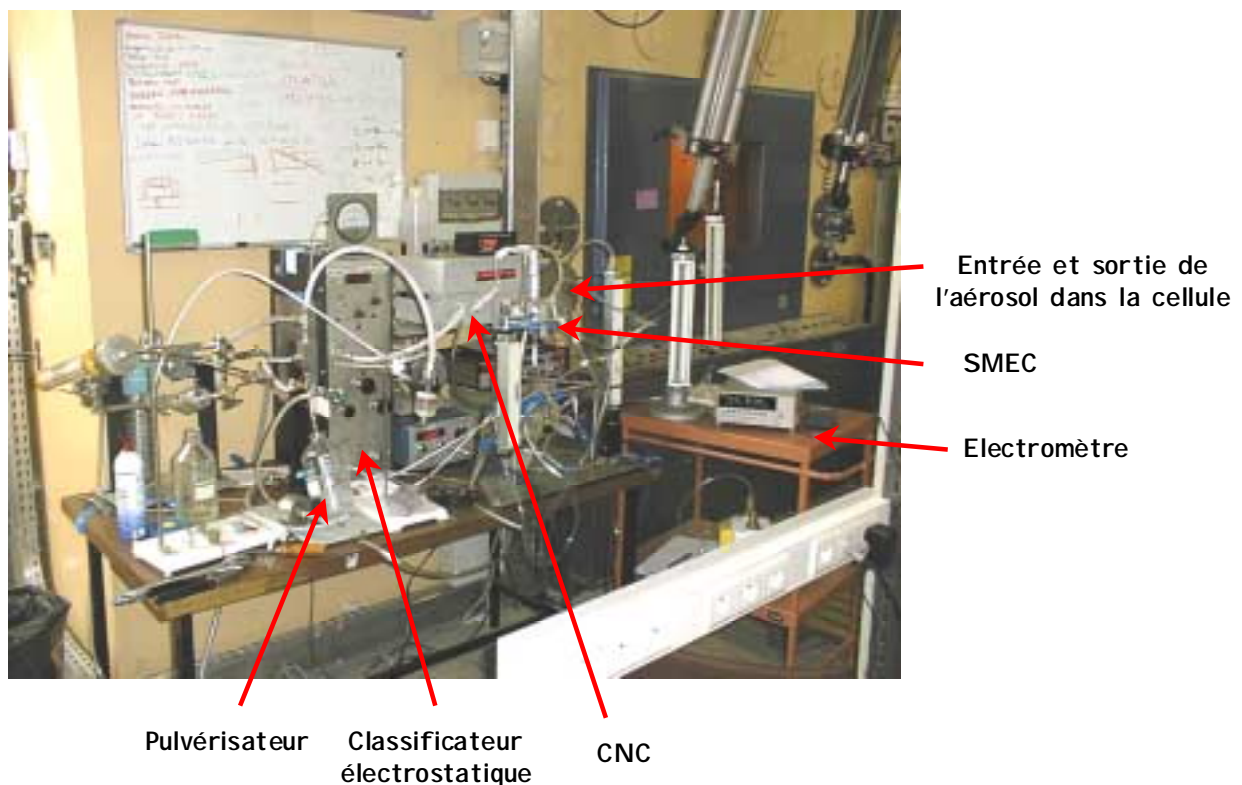


Figure 3.13 - Photographie du dispositif de mesure de la distribution des charges électriques.

### III.2. Résultats expérimentaux

Nous mesurons à l'aide de notre dispositif expérimental représenté figure 3.12, les distributions des charges électriques pour des aérosols de diamètres égaux à  $0,10\mu\text{m}$  et  $0,30\mu\text{m}$  exposés à deux débits de dose différents, égaux à  $24\text{ Gy/h}$  et à  $7000\text{ Gy/h}$ . Nous effectuons la mesure du paramètre d'asymétrie conjointement à celle de la distribution des charges électriques de l'aérosol.

Signalons par ailleurs, que nous ne remarquons pas d'influence de l'aérosol sur la détermination du paramètre d'asymétrie. En effet, sa concentration étant faible (environ  $500\text{ p. cm}^{-3}$ ), la fixation des ions est négligeable devant leur recombinaison. Les valeurs mesurées sont égales à  $0,78$  et  $0,93$  pour des débits de doses respectivement égaux à  $24\text{ Gy/h}$  et à  $7\text{ kGy/h}$ .

Nous représentons sur les figures 3.14 et 3.15 les distributions des charges électriques obtenues pour un aérosol de diamètre égal à  $0,10\mu\text{m}$ , pour des débits de dose de  $24\text{ Gy/h}$  et  $7\text{ kGy/h}$ . Nos résultats sont représentés avec un intervalle de confiance égal à  $95\%$ . Nous représentons également la distribution des charges électriques déterminée par l'équilibre de Boltzmann ainsi que le modèle de Clement et Harrison, prenant en compte le paramètre d'asymétrie. Soulignons que le diamètre de l'aérosol étudié dans ce cas, se situe à la limite entre le régime continu et le régime intermédiaire.

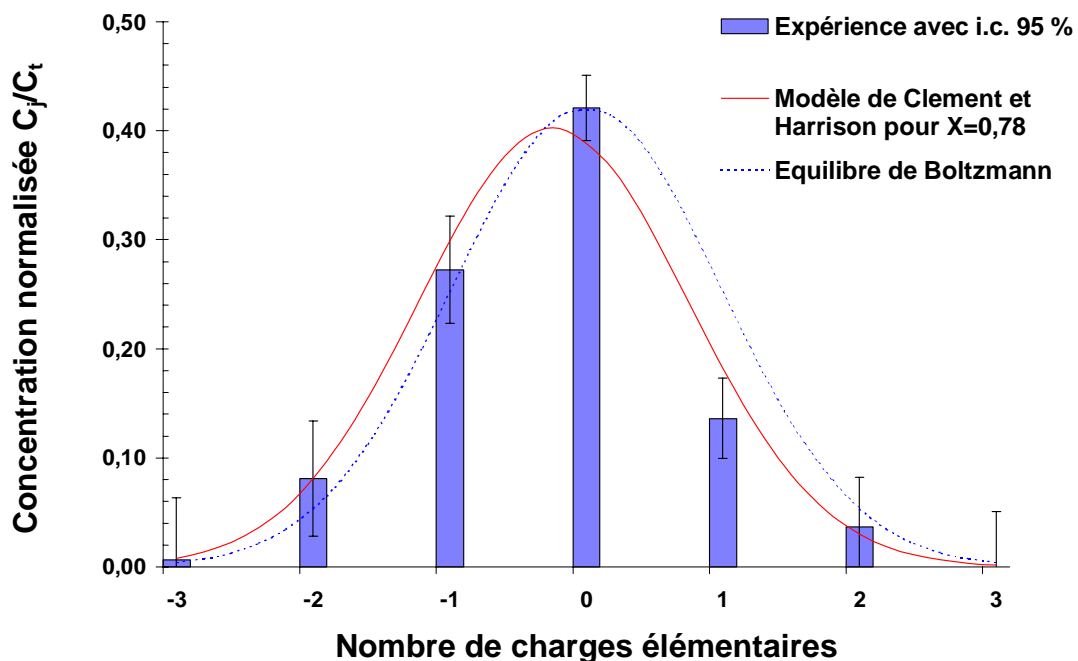


Figure 3.14 - Distribution des charges électriques obtenue pour aérosol de  $0,10\mu\text{m}$  et avec un débit de dose égal à  $24\text{ Gy/h}$ .

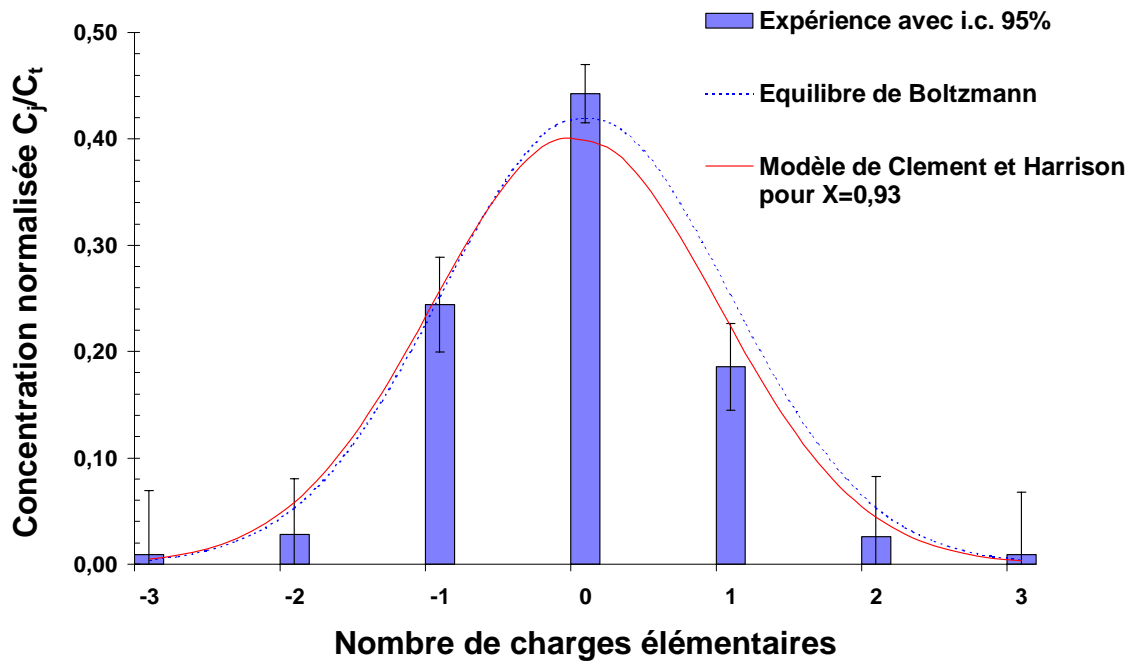


Figure 3.15 - Distribution des charges électriques obtenue pour aérosol de 0,10  $\mu\text{m}$  et avec un débit de dose égal à 7000 Gy/h.

Nous remarquons sur les figures 3.14 et 3.15 une variation de la distribution des charges électriques de l'aérosol en fonction du débit de dose, donc de l'intensité d'ionisation. En effet, lorsque le milieu est très fortement ionisé (7 kGy/h) la distribution des charges se rapproche de la loi d'équilibre de Boltzmann. Ce résultat est dû à un paramètre d'asymétrie proche de 1. Par ailleurs, compte tenu des incertitudes, nos données expérimentales ne permettent pas de différencier franchement le modèle de Clement et Harrison de l'équilibre de Boltzmann. Néanmoins, nous mesurons une fraction de particules portant une charge élémentaire négative plus importante que celle portant une charge positive.

Nous constatons d'une façon générale, que le modèle de Clement et Harrison est en assez bon accord avec nos données expérimentales, bien que quelques fractions de la distribution des charges représentée figure 3.14 soient en dehors de nos incertitudes de mesures.

Nous calculons finalement les charges moyennes de l'aérosol pour ces deux débits de dose, et nous obtenons respectivement  $-0,28 e$  et  $-0,07 e$ . Les écarts types respectifs sont égaux à  $0,16 e$  et  $0,15 e$ . Les charges moyennes calculées à partir du modèle de Clement et Harrison sont respectivement  $-0,24 e$  et  $-0,06 e$ .

Nous déterminons par la suite les distributions des charges pour un aérosol de diamètre égal à  $0,30 \mu\text{m}$  pour des débit de doses égaux à  $24\text{Gy/h}$ ,  $100 \text{Gy/h}$  et  $7 \text{kGy/h}$ . Les paramètres d'asymétrie déterminés conjointement aux distributions de charges sont respectivement égaux à  $0,78$ ,  $0,88$  et  $0,93$ . Nous représentons nos résultats sur les figures 3.16, 3.17 et 3.18.

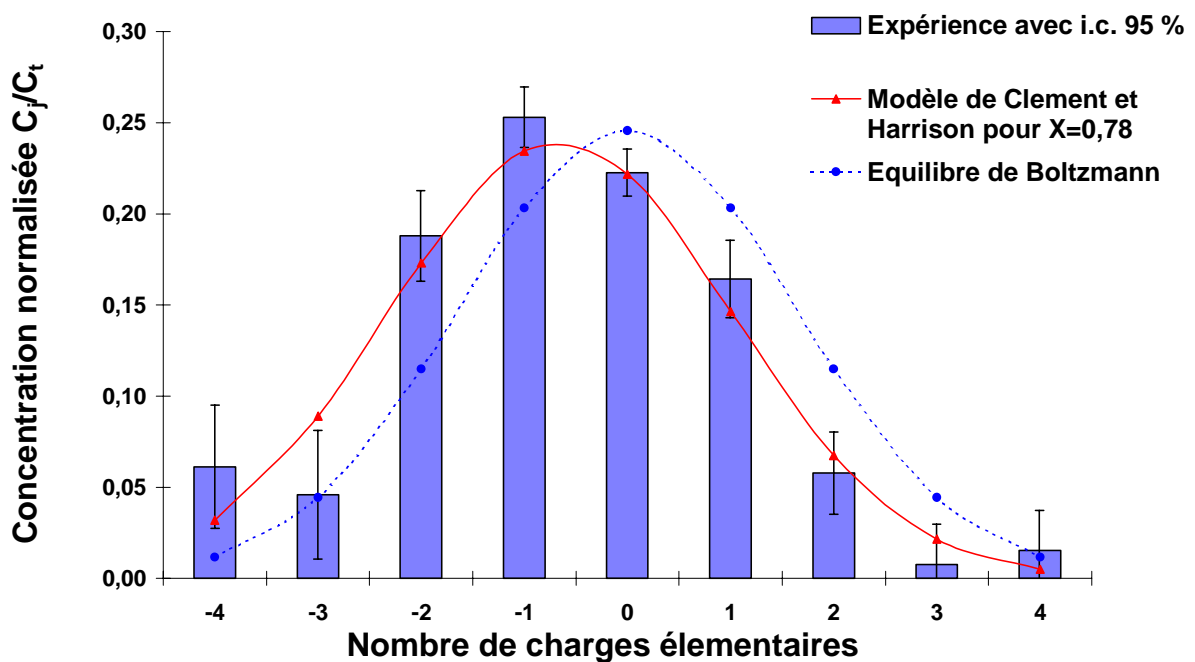


Figure 3.16 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de  $0,30 \mu\text{m}$  et un débit de dose égal à  $24 \text{Gy/h}$ .

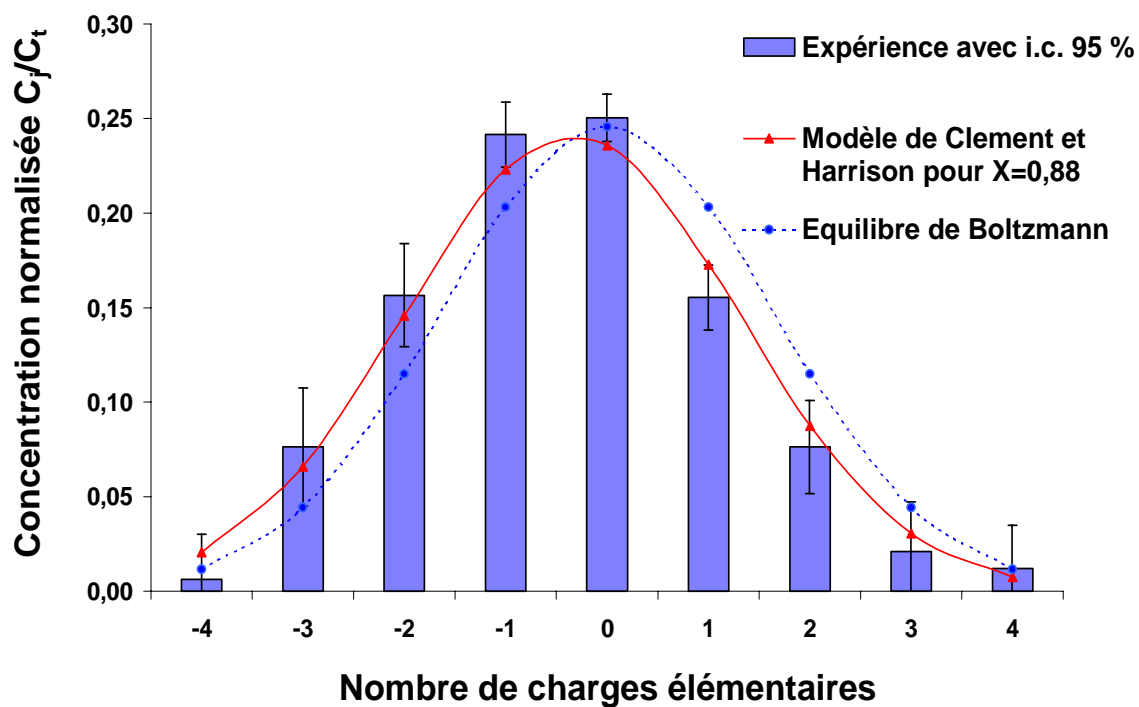


Figure 3.17 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de 0,30  $\mu\text{m}$  et un débit de dose égal à 100 Gy/h.

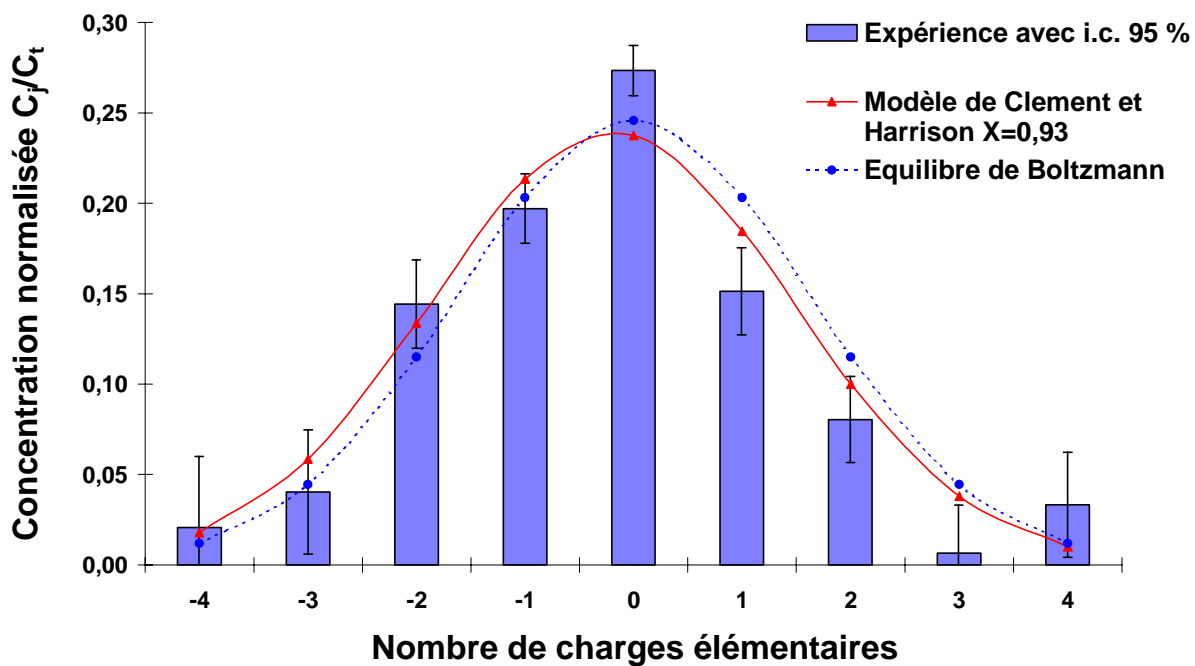


Figure 3.18 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de 0,30  $\mu\text{m}$  et un débit de dose égal à 7000 Gy/h.



Nous remarquons sur ces 3 figures une différence significative par rapport à l'équilibre de Boltzmann. Là encore, le modèle de Clement et Harrison représente convenablement nos données expérimentales, et nous observons une variation analogue à celle obtenue pour un aérosol de 0,10  $\mu\text{m}$ . La distribution des charges électriques de l'aérosol se rapproche de l'équilibre de Boltzmann lorsque l'intensité d'ionisation augmente. Notons que cette variation est conforme à la variation mesurée du paramètre d'asymétrie.

Nous synthétisons les différents résultats obtenus sur la charge moyenne des aérosols dans le tableau 3.1. Nous confirmons ainsi que la charge électrique de l'aérosol dépend de l'irradiation du milieu, mais aussi du diamètre des particules. En effet, la proportion des particules possédant plusieurs charges électriques augmente avec le diamètre, et l'effet de l'asymétrie est alors plus important dans le calcul de la charge électrique moyenne.

Tableau 3.1 - Charge moyenne de l'aérosol en fonction du débit de dose et du diamètre des particules.

diamètre de l'aérosol ( $\mu\text{m}$ )	Débit de dose (Gy/h)	Charge moyenne expérimentale (e)	Ecart type expérimental (e)	Charge moyenne théorique (e)
0,10	24	-0,28	0,15	-0,24
0,10	7000	-0,07	0,16	-0,06
0,30	24	-0,64	0,11	-0,62
0,30	100	-0,39	0,10	-0,35
0,30	7000	-0,28	0,13	-0,19

### III.3. *Variation de la charge électrique de l'aérosol en fonction de l'intensité d'ionisation*

- Variation de la charge moyenne de l'aérosol en fonction du paramètre d'asymétrie

Nous avons mis en évidence, dans la partie précédente, une évolution de la distribution des charges électriques de l'aérosol et donc de sa charge moyenne en fonction de l'intensité d'ionisation dans le volume d'échantillonnage. Afin de relier cette évolution avec la variation

du paramètre d'asymétrie, nous effectuons plusieurs mesures avec différents débits de dose compris entre 5 Gy/h et 12 kGy/h.

Nous avons précédemment étudié la variation du paramètre d'asymétrie dans le chapitre 2 (fig. 2.21), montrant ainsi qu'il évolue en fonction de la dose de rayonnement reçue dans le volume d'échantillonnage. Pour relier simplement sa variation à celle de la charge moyenne de l'aérosol, nous utilisons l'expression analytique établie par Gunn (1955) (eq. 1.40). En effet, cette équation permet de calculer directement la charge moyenne en fonction du logarithme du paramètre d'asymétrie ; puisque le modèle de Clement Harrison ne donne pas une expression analytique, nous devons utiliser la relation 3.3. Rappelons que ces deux calculs donnent des résultats similaires dans les conditions standard de pression et de température (fig 1.3).

Sur la figure 3.19, nous présentons la variation de la charge moyenne de l'aérosol en fonction du logarithme du paramètre d'asymétrie pour un aérosol de diamètre égal à 0,30  $\mu\text{m}$ . Nos résultats expérimentaux sont représentés avec à un intervalle de confiance égal à 95 %. Nous représentons également la charge électrique moyenne calculée en utilisant l'expression analytique de Gunn (1955) (eq. 1.40).

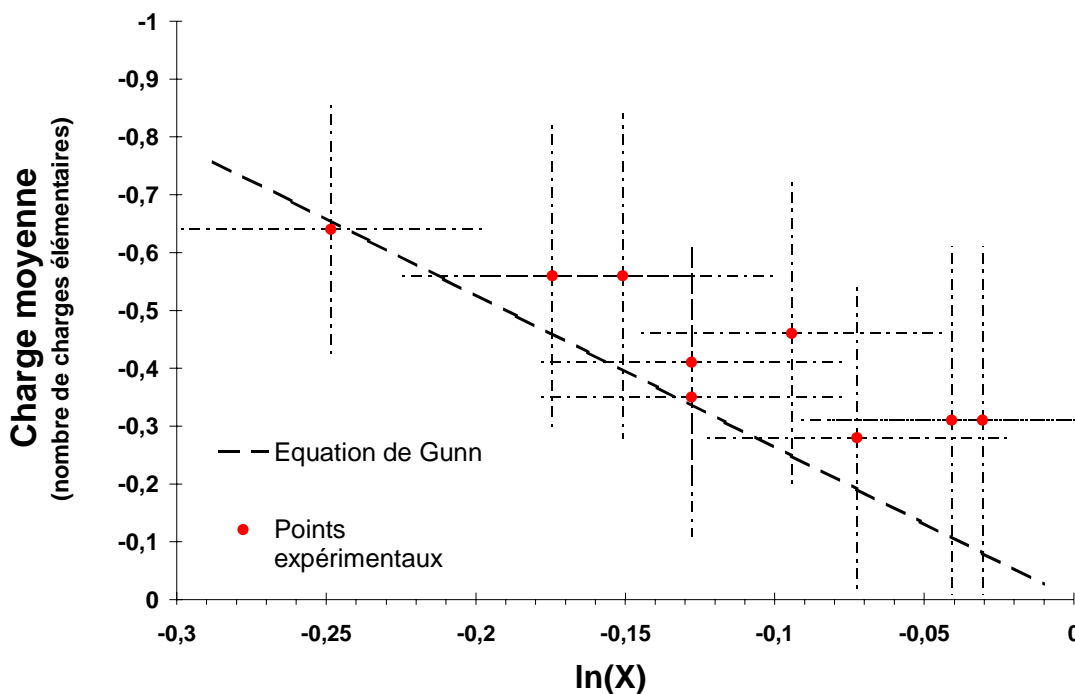


Figure 3.19 - Variation de la charge moyenne d'un aérosol de diamètre égal à 0,30  $\mu\text{m}$  en fonction du logarithme du paramètre d'asymétrie.

Nous constatons sur la figure 3.19 que le modèle de Gunn (1954) ne représente pas bien les charges moyennes calculées à partir de nos données expérimentales. Algébriquement, il surestime légèrement nos résultats expérimentaux. Nous remarquons cependant, que la variation qualitative de nos résultats expérimentaux est en accord avec l'expression de Gunn, la charge moyenne augmentant lorsque le paramètre d'asymétrie tend vers 1.

Par ailleurs, nous constatons, d'une part, que l'écart entre le modèle et nos résultats est plus important lorsque le paramètre d'asymétrie est proche de 1 et donc que le milieu est fortement ionisé, d'autre part, que la charge moyenne expérimentale de l'aérosol ne tend pas vers une valeur nulle.

Pour interpréter ce résultat, nous devons reconsidérer la validité de notre système de mesure du paramètre d'asymétrie pour les fortes intensités d'ionisation. En effet, nous montrons dans le chapitre 2, que la courbe expérimentale permettant de déterminer les conductibilités électriques dues aux ions positifs et négatifs diffère sensiblement de la réponse idéale du système de mesure. Cette différence résulte principalement d'une dispersion du spectre de mobilités électriques des ions positifs et négatifs, ainsi que de l'ionisation non négligeable qui est présente à l'intérieur du condensateur pour les forts débits de dose.

Dans ce cas, il est nécessaire de connaître le spectre de mobilités électriques des ions ainsi que leurs concentrations respectives pour déterminer avec précision le rapport entre les conductibilités électriques, et donc le rapport d'asymétrie. Par ailleurs, lorsque nous appliquons des fortes intensités d'ionisation dans le volume d'échantillonnage, il est vraisemblable que nous obtenons une population non négligeable d'électrons libres (Loeb, 1961). Etant donné la résolution de notre système de mesure, nous ne pouvons pas distinguer ces électrons des petits ions présents dans le milieu. Toutefois, la présence de ces électrons libres et leur fixation directe sur les particules peut expliquer l'excédent de charges négatives que nous observons sur l'aérosol lorsque le milieu est fortement ionisé.

- Variation de la charge moyenne de l'aérosol en fonction de l'intensité d'ionisation

Nous avons vu, dans le premier chapitre, qu'il existe une expression permettant de déterminer la charge électrique moyenne de l'aérosol en fonction d'un paramètre de charge (Bricard *et al.*, 1965) (eq. 1.51). Rappelons que ce paramètre ( $Q/C_t^2$ ) est défini par le rapport entre l'intensité d'ionisation effective de l'aérosol ( $Q = q - \alpha \cdot n_+ \cdot n_-$ ) et le carré de sa concentration ( $C_t$ ). Cette équation montre que la charge moyenne tend vers zéro lorsque le

milieu est faiblement ionisé (cas de l'atmosphère) ou bien lorsque l'aérosol est fortement concentré. Elle a été validée par Pourprix (1973) pour des paramètres de charges compris entre environ  $5 \times 10^{-13}$  et  $5 \times 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ .

Compte tenu des faibles concentrations d'aérosols analysés et du fort taux d'ionisation dans le volume d'échantillonnage, nous obtenons dans nos expériences des paramètres de charges compris entre  $10^{-8}$  et  $4 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ . Afin de comparer l'ensemble de nos résultats expérimentaux montrant la variation de la charge électrique en milieu fortement ionisé par une irradiation gamma, nous calculons les paramètres de charges obtenus dans chaque expérience. Pour calculer ce paramètre, nous utilisons l'équation approchée d'évolution des concentrations en ions positifs ou négatifs dans le milieu. Par exemple, pour les ions négatifs ( $n_-$ ) nous obtenons :

$$\frac{dn_-}{dt} = q - \alpha \cdot n_+ \cdot n_- - \beta_{-IJ} \cdot n_- \cdot C_t, \quad (3.4)$$

où  $q$  représente le taux de production des ions ( $\text{m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ ) dans le milieu,  $\beta_{-IJ}$  le coefficient de fixation des petits ions négatifs sur les particules portant en moyenne  $J$  charges élémentaires ( $\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$ ) et  $C_t$  la concentration totale de l'aérosol ( $\text{m}^{-3}$ ).

Lorsque la concentration en ions est stationnaire, nous obtenons alors  $Q = \beta_{-IJ} \cdot n_- \cdot C_t$ . Nous déterminons ainsi le paramètre de charge en fonction de la concentration en ions négatifs et celle de l'aérosol. Le coefficient de fixation est défini par la relation 1.30, et nous le calculons en fonction de la charge moyenne de l'aérosol déterminée expérimentalement. Nous utilisons un rapport moyen entre les mobilités des petits ions positifs et négatifs égal à 0,79 déterminé à partir de nos données expérimentales obtenues pour des débits de dose faibles, de l'ordre de quelques Gy/h.

Nous représentons sur la figure 3.20 la variation de la charge moyenne d'un aérosol de  $0,30 \mu\text{m}$  en fonction du paramètre de charge établi par Bricard *et al.* (1965). Nos résultats expérimentaux sont obtenus pour des débits de dose compris entre environ 5 Gy/h et 12 kGy/h, la concentration de l'aérosol est comprise entre  $3 \times 10^8$  et  $7 \times 10^9 \text{ p. m}^{-3}$ . Nos résultats sont représentés avec un intervalle de confiance égal à 95 %.

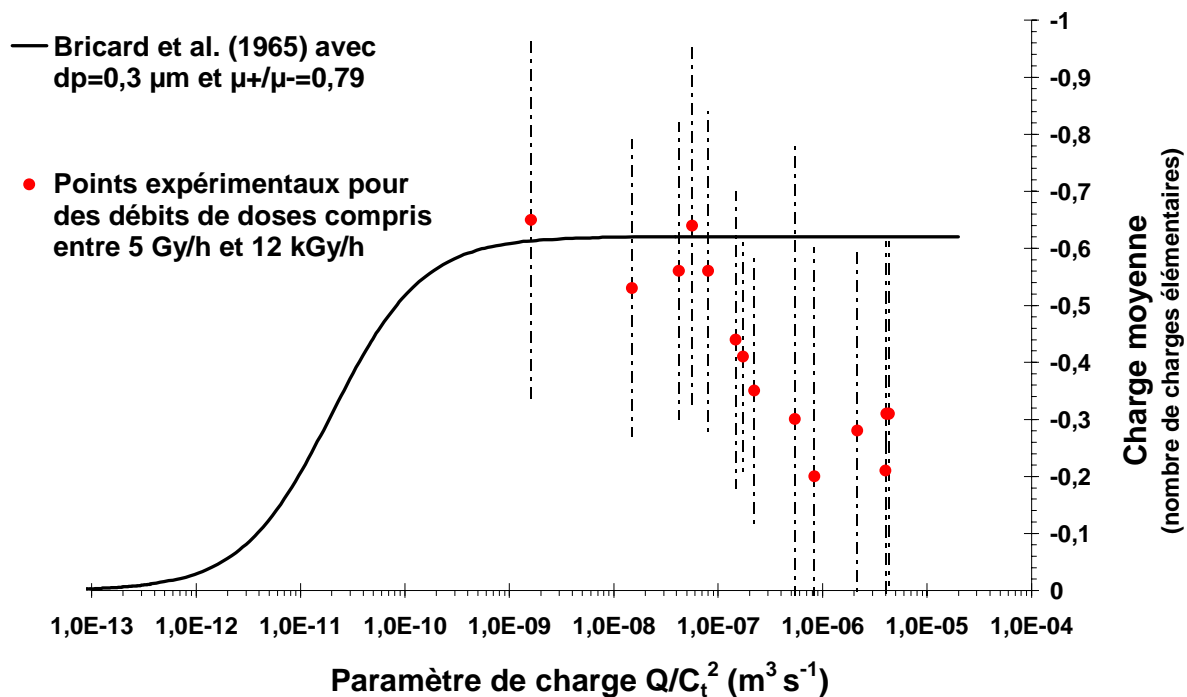


Figure 3.20 - Variation de la charge moyenne de l'aérosol en fonction du paramètre de charge  $Q/C_t^2$ .

Nous remarquons que ce modèle n'est plus valable dans le cas des milieux très fortement ionisés. En effet, nous montrons dans le chapitre 2 qu'il existe une variation importante de la mobilité des ions positifs et négatifs et de leur rapport lorsque le milieu est fortement ionisé, or le modèle de Bricard *et al.* (1965) suppose que ce rapport est fixe. Par ailleurs, nous montrons également qu'il existe une charge d'espace non négligeable dans le volume d'échantillonnage principalement due aux différences de concentrations en ions positifs et négatifs. L'hypothèse d'un milieu électriquement neutre utilisée pour établir cette loi n'est donc plus valable.

Nous constatons, qu'il existe une variation importante de la charge moyenne de l'aérosol lorsque le paramètre de charge est supérieur à  $10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ . Cette limite correspond à un débit de dose d'environ 100 Gy/h et une concentration en ions de chaque signe supérieure à  $10^{13} \text{ m}^{-3}$ . Nous remarquons, de plus, que la charge moyenne de l'aérosol semble se stabiliser autour d'une valeur moyenne égale à -0,25 e pour un paramètre de charge supérieur à  $10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , alors que, en accord avec la loi de Bricard *et al.*, elle atteint -0,6 e entre  $10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  et  $10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ .

## IV. conclusion

Nous avons conçu et réalisé deux dispositifs expérimentaux pour mesurer la distribution des charges électriques des aérosols monodispersés.

Nous montrons que ces charges électriques peuvent évoluer significativement en aval d'une source d'ions. En effet, la charge moyenne de l'aérosol tend vers zéro et la distribution des charges électriques se rapproche de l'équilibre de Boltzmann lorsqu'il s'éloigne de la source d'ions. Cette variation est due à une évolution du rapport entre les concentrations ioniques du fait de leur diffusion asymétrique sur la paroi du conduit. Nous mettons également en évidence une variation locale de la charge électrique moyenne de l'aérosol au voisinage de la paroi. En effet, nous montrons qu'elle est algébriquement plus importante près de la paroi. Soulignons que ces variations sont conformes qualitativement à celles des concentrations ioniques déterminées expérimentalement et numériquement dans le chapitre 2.

Pour l'étude de la charge électrique des aérosols en milieu fortement ionisé, nous utilisons une cellule d'irradiation avec des sources de  $^{60}\text{Co}$  ce qui nous permet d'une part, d'obtenir un fort taux d'ionisation, d'autre part de pouvoir le faire varier facilement. Nous effectuons ainsi, pour différents taux d'ionisation, la mesure du paramètre d'asymétrie et la mesure de la distribution des charges électriques de l'aérosol. Nos résultats montrent que la charge électrique de l'aérosol varie significativement lorsque le débit de dose est supérieur à 100 Gy/h et la concentration en ions supérieure à  $10^{13} \text{ m}^{-3}$ . Dans ce cas, la charge moyenne augmente, mais elle reste quand même faiblement négative. Nous montrons que cette évolution est due à la variation du paramètre d'asymétrie en milieu fortement ionisé. Nous constatons, toutefois, que les modèles prenant en compte le paramètre d'asymétrie (Gunn 1954, Clement et Harrison 1991b) surestiment la charge moyenne par rapport à nos mesures lorsque le milieu est très fortement ionisé. Nous pensons que ces écarts sont liés à notre système de mesure du paramètre d'asymétrie. En effet, pour de fortes intensités d'ionisation, l'action du rayonnement gamma sur les conditions d'opérations du système n'est pas négligeable. De plus, le spectre des mobilités électriques des petits ions étant probablement plus dispersé, l'interprétation de nos résultats ne s'effectue pas dans des conditions idéales. Par ailleurs, la résolution du système étant faible, il est probable que nous ne pouvons pas mettre expérimentalement en évidence les ions dont la mobilité électrique est élevée, ainsi que des électrons libres certainement présents. C'est ce qui peut expliquer l'excès de charges négatives que nous observons lorsque le milieu est très fortement ionisé.

## CHAPITRE IV

### ETUDE EXPERIMENTALE DE LA CHARGE ELECTRIQUE DES AEROSOLS RADIOACTIFS

#### I. Présentation de l'étude

Nous avons vu, dans le premier chapitre, que l'état de charge électrique d'un aérosol radioactif peut être sensiblement différent de celui d'un aérosol non radioactif. Il existe maintenant un modèle bien établi permettant de décrire la charge électrique de ces aérosols (Clement et Harrison, 1992), mais les quelques résultats expérimentaux disponibles dans la littérature ne permettent pas de le valider complètement. Pour parfaire cette validation, nous nous proposons d'étudier expérimentalement la charge électrique des aérosols radioactifs en prenant soin de maîtriser convenablement l'ensemble des paramètres influents qui interviennent dans le modèle théorique.

Rappelons succinctement le problème posé sur les plans théorique et expérimental.

L'état de charge électrique d'un aérosol radioactif dépend de la nature du rayonnement (alpha ou bêta), de l'activité spécifique des particules ( $\eta$ ), de la concentration totale de l'aérosol ( $C_t$ ), du nombre de paires d'ions créées à chaque désintégration ( $I$ ) et du paramètre d'asymétrie ( $X$ ). Par ailleurs, le temps nécessaire pour atteindre un état de charge électrique stationnaire dépend de la concentration en ions à l'équilibre (eq. 1.75) et par conséquent de  $I$ ,  $\eta$  et  $C_t$ .

Le critère, établi par Clement et Harrison (1991b), pour obtenir un auto-chargement important d'un aérosol radioactif (eq. 1.76) impose d'une part, une forte activité spécifique, d'autre part, une faible concentration d'aérosol et un faible nombre de paires d'ions créées à chaque désintégration.

Compte tenu de ces éléments, nous concevons et réalisons un dispositif expérimental permettant d'une part, de produire un aérosol radioactif, d'autre part, d'analyser sa distribution des charges électriques. Nos conditions expérimentales doivent, bien évidemment, aboutir à la mise en évidence d'un autochargement de l'aérosol.

Signalons que la manipulation d'aérosols radioactifs est soumise à une réglementation rigoureuse pour la protection de l'environnement et des individus. A partir de cette réglementation, nous allons définir nos contraintes expérimentales et dimensionner notre installation. Compte tenu de la nature et de l'activité des aérosols que nous manipulons, nous devons confiner notre dispositif expérimental dans une boîte à gants. Notre étude comporte donc un aspect radioprotection à travers la conception et la réalisation d'un confinement adapté à notre dispositif expérimental. Nous devons alors implanter notre l'installation dans une zone de travail disposant d'équipements spéciaux tels que des circuits de ventilation, de filtration, des instruments de détection des rayonnements et de mesure de la contamination atmosphérique.

Nous disposons au sein de notre laboratoire d'une zone contrôlée pouvant accueillir des boîtes à gants. L'activité des éléments radioactifs qu'on peut manipuler dans cette zone est déterminée par le classement de l'installation relatif aux équipements de protection et de sécurité mis en œuvre. Notre installation n'étant pas classée pour la protection de l'environnement (ICPE), l'activité équivalente des radioéléments présents dans la zone contrôlée doit être inférieure à 3,7 MBq (décret n° 96-197 du 11 mars 1996). Cette activité équivalente est calculée en fonction du groupe de radiotoxicité des éléments utilisés ainsi que de la forme et de l'activité des sources radioactives (scellées ou non scellées) et de leurs utilisations (stockage ou manipulation).

Notre principale contrainte expérimentale est donc l'activité globale que nous pouvons manipuler dans une boîte à gants située dans notre zone de travail contrôlée. Compte tenu de l'activité et de la nature des différentes sources déjà stockées et utilisées dans le laboratoire, l'activité que nous pouvons manipuler est en fait limitée à environ 1,5 MBq de radioéléments du groupe 3 de radiotoxicité.



Compte tenu de l'ensemble de nos contraintes expérimentales, notre étude se déroule en quatre phases principales.

- Le dimensionnement des paramètres de l'aérosol radioactif pour obtenir un autochargement et le choix des techniques expérimentales.
- La validation en inactif de notre dispositif expérimental, cette phase assure la maîtrise et le contrôle des différents paramètres influents; elle comprend donc le développement et la mise au point spécifique des méthodes et des techniques expérimentales utilisées pour notre étude.
- La "mise en actif" du dispositif expérimental. Cette phase comprend une première étape de projet d'installation de l'expérience en zone contrôlée qui doit permettre de vérifier l'adéquation de notre dispositif et les méthodes expérimentales avec les exigences de sécurité pour la manipulation de matières radioactives, spécifiquement sous forme d'aérosols. Dans une seconde étape, nous réalisons le confinement dynamique de notre dispositif expérimental dans une boîte à gants et nous validons son fonctionnement afin d'être conforme à la norme relative aux classes des enceintes de confinement étanches.
- La dernière phase consiste à réaliser les expériences avec des aérosols radioactifs, puis à interpréter les résultats obtenus.

## **II. Dimensionnement de l'expérience**

Nous avons vu que nos conditions opérationnelles sont limitées par l'activité des éléments radioactifs que nous pouvons manipuler. Or, nous l'avons dit, la charge électrique d'un aérosol radioactif dépend principalement de son activité spécifique. De ce fait, il est nécessaire d'effectuer un dimensionnement rigoureux de notre étude expérimentale pour nous assurer de l'obtention d'un auto-chargement significatif de l'aérosol radioactif.

Pour cela, nous choisissons et développons des techniques expérimentales, d'une part, pour produire un aérosol radioactif, d'autre part, pour analyser sa distribution des charges

électriques. Bien évidemment, ces techniques doivent pouvoir être associées, c'est à dire que l'aérosol produit doit avoir des caractéristiques (diamètre, monodispersion, concentration) compatibles avec les performances du système de mesure de la distribution des charges électriques.

Par ailleurs, nous savons que la géométrie du milieu et le temps d'évolution de la charge électrique sont des paramètres importants. Nous portons donc une attention particulière à l'échantillonnage de l'aérosol radioactif entre le système de production et le système d'analyse.

Nous utilisons alors le modèle établi par Clement et Harrison (1992) (eq. 1.72) pour déterminer et optimiser les paramètres de l'aérosol radioactif en fonction de nos contraintes expérimentales.

## II.1. *La génération de l'aérosol radioactif*

- Les différentes techniques de production d'aérosols radioactifs

Il existe de nombreuses techniques de production d'aérosols radioactifs. Elles sont généralement spécifiques suivant le radioélément, la forme chimique désirée, la granulométrie, la concentration et l'activité de l'aérosol radioactif à produire. Spurny et Lodge (1968) ainsi que Newton *et al.* (1980) ont synthétisé les méthodes les plus générales. Citons par exemple : l'activation neutronique des particules, l'activation par un gaz radioactif (Radon, Krypton, Xenon), la condensation de vapeur ou encore la production de gouttelettes à partir d'une solution radioactive.

Lorsqu'on désire obtenir un aérosol monodispersé, il est généralement nécessaire de décomposer la génération en deux étapes. Une étape de production de particules radioactives monodispersées et une étape de dispersion de ces particules. Bogen (1970) puis Szende et Udvarhelyi (1975) ont présenté des méthodes permettant d'obtenir des particules monodispersées de latex contenant des éléments radioactifs par polymérisation d'une émulsion. Raabe *et al.* (1975) ont conçu et mis en œuvre une méthode permettant d'obtenir des particules radioactives monodispersées par la collection de particules polydispersées dans une centrifugeuse. L'aérosol est ensuite obtenu en pulvérisant une solution dans laquelle on a introduit les particules radioactives monodispersées.

Nous constatons, d'une façon générale, que toutes ces techniques sont compliquées à mettre en œuvre et que le contrôle des différents paramètres de l'aérosol radioactif n'est pas simple. C'est pourquoi il nous est apparu que la méthode la plus simple pour produire un aérosol radioactif est la production de gouttelettes à partir d'une solution contenant les éléments radioactifs.

Cette méthode a été étudiée et appliquée par Ammerich (1988) en utilisant la pulvérisation par ultra-sons d'une solution radioactive. L'auteur montre qu'on peut contrôler facilement le diamètre et l'activité volumique de l'aérosol à partir des caractéristiques de fonctionnement du pulvérisateur et de la solution radioactive utilisée. Toutefois, la pulvérisation par ultra-sons n'est pas compatible avec nos contraintes expérimentales, notamment la monodispersion et la concentration de l'aérosol.

Or, il existe plusieurs systèmes permettant de produire des gouttelettes monodispersées. Citons par exemple : la pulvérisation électrohydrodynamique, le disque tournant "spinning disc" ou les systèmes à orifice vibrant (Raabe et Newton 1970, Berglund et Liu 1973). Ces différents systèmes peuvent produire des gouttelettes sur une large gamme de dimensions (4 nm à 1 mm) et de concentrations ( $10$  à  $10^6$  p.cm<sup>-3</sup>).

Compte tenu de l'activité maximum que nous pouvons manipuler et de l'activité spécifique des particules nécessaire pour l'obtention d'un autochargement, notre système de génération d'aérosol radioactif doit permettre de travailler avec un volume total de solution faible, afin d'optimiser la concentration en activité de la solution.

Par ailleurs, le système doit permettre de produire de grosses gouttelettes (quelques dizaines de microns) parfaitement uniformes, en faible concentration et de façon reproductible. Finalement, le système répondant le mieux à toutes ces contraintes est le générateur d'aérosols à orifice vibrant. Présentons son fonctionnement.

- Le générateur à orifice vibrant

Le principe de fonctionnement de cet appareil est le suivant. On forme un jet liquide en faisant passer un débit constant de solution à travers un micro orifice (20 μm). Le jet est brisé de façon régulière par l'oscillation mécanique d'une céramique piézoélectrique qui est solidaire de l'orifice. On obtient ainsi des gouttelettes dont le diamètre est parfaitement uniforme.

Nous représentons sur la figure 4.1, le schéma de principe de cet appareil.

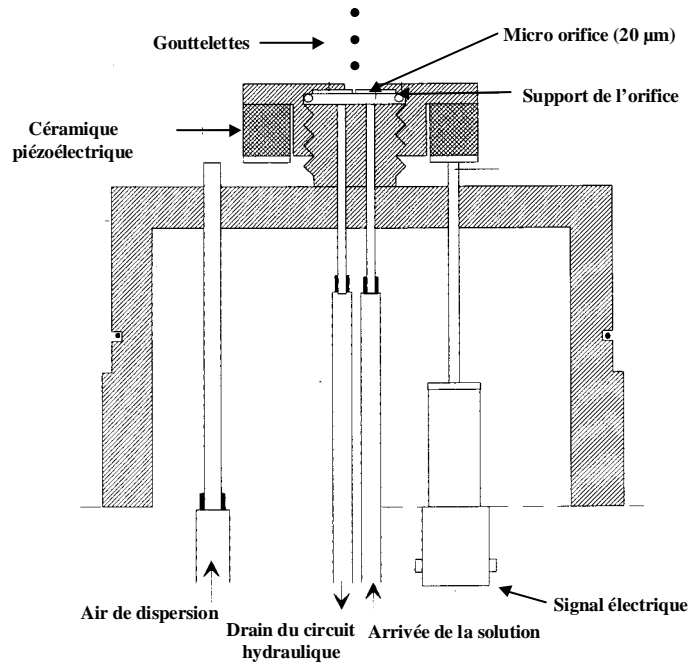


Figure 4.1 - Schéma du système de production de gouttelettes par un orifice vibrant.

Le débit de la solution à travers le micro orifice est contrôlé par un pousse seringue, tandis que l'oscillation de la céramique est contrôlée par un générateur de fréquences. Le diamètre des gouttelettes ( $d_g$ ) est déterminé en fonction du débit de la solution ( $Q_v$ ) et de la fréquence d'oscillation de la céramique ( $f$ ) par la relation :

$$d_g = \left( \frac{6 \cdot Q_v}{\pi \cdot f} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.1)$$

Les gouttelettes sont ensuite entraînées et séchées par un débit d'air sec et filtré compris entre 50 et 100 l/min. Le diamètre ( $d_p$ ) des particules ainsi produites est fonction du diamètre des gouttelettes ( $d_g$ ) et de la concentration volumique ( $C_v$ ) des espèces non volatiles présentes dans la solution. Il s'exprime par la relation :

$$d_p = d_g \cdot C_v^{1/3} \quad (4.2)$$

La concentration théorique de l'aérosol  $C_t$  ( $\text{cm}^{-3}$ ) est alors fonction du débit d'air  $Q_a$  ( $\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$ ) et du taux de production des gouttelettes qui est égal à la fréquence de la céramique  $f$  ( $\text{s}^{-1}$ ). Elle s'exprime par :

$$C_t = \frac{f}{Q_a} . \quad (4.3)$$

Signalons qu'il existe des pertes importantes de particules dans la colonne de séchage de l'appareil, dues principalement à des effets électrostatiques et inertiels. En effet, les gouttelettes formées par ce mécanisme sont très fortement chargées, elle peuvent porter plusieurs milliers de charges élémentaires (Berglund et Liu, 1973). Pour diminuer les effets électrostatiques, il est donc nécessaire de réduire l'état de charge électrique des gouttelettes. Pour cela, il est possible d'utiliser un processus d'induction de charge lors de la formation des gouttelettes (Reischl *et al.*, 1977) ou bien un processus de "neutralisation" à l'aide d'une source radioactive (Berglund et Liu, 1973). Liu *et al.* (1974) ont montré qu'on peut obtenir une concentration d'aérosol égale à environ 80 % de la concentration théorique pour des particules de diamètres inférieurs à 5  $\mu\text{m}$ , en utilisant une source de  $^{85}\text{Kr}$  pour neutraliser l'aérosol.

L'activité spécifique des particules de l'aérosol radioactif  $\eta$  (Bq) est déterminée en fonction du volume des gouttelettes produites et de l'activité massique de la solution radioactive  $A_s$  utilisée, en supposant que la densité de la solution est égale à 1, soit :

$$\eta = \frac{2}{9} \cdot d_g^3 \cdot A_s . \quad (4.4)$$

En revanche, le diamètre des particules sèches dépend du diamètre des gouttelettes initiales et de la concentration en impuretés non volatiles de la solution (eq. 4.2). Il est donc nécessaire de bien connaître les caractéristiques de la solution radioactive pour déterminer le diamètre et l'activité de l'aérosol.

La concentration de l'aérosol dépend des conditions de fonctionnement du générateur mais aussi de l'échantillonnage et de son état de charge électrique. Pour neutraliser les gouttelettes et donc l'aérosol, nous employons une source radioactive de  $^{85}\text{Kr}$ . Cependant, comme nous l'avons montré dans le chapitre 3, l'état de charge électrique de l'aérosol est

généralement différent de l'équilibre de Boltzmann. Le système de neutralisation nécessite donc une validation expérimentale pour bien maîtriser l'état de charge électrique initial de l'aérosol radioactif. Nous exposerons cette étape dans la validation en inactif de notre installation.

- La solution radioactive

Il existe de nombreuses solutions radioactives contenant des radionucléïdes avec une concentration en activité bien déterminée. Signalons qu'elles sont généralement composées d'acide chlorhydrique ou nitrique avec des concentrations comprises entre 0,1 Mol/l et 1 Mol/l.

Présentons les critères de choix de nos solutions radioactives.

- L'énergie du rayonnement émis. En effet, si l'énergie est faible le taux d'ionisation sera également faible et le chargement électrique de l'aérosol d'autant plus important.
- La période du radioélément. Elle doit être sensiblement plus longue que la durée d'une expérience, afin de considérer l'activité spécifique des particules comme étant constante.
- La concentration en activité de la solution. Cette dernière doit être suffisamment élevée pour assurer une activité spécifique des particules permettant d'observer le phénomène d'auto-chargement.
- La composition chimique et la concentration en impuretés de la solution. Celles-ci doivent être compatibles avec les éléments constitutifs de notre dispositif expérimental.

Finalement, les solutions répondant le mieux à l'ensemble de nos critères, sont les solutions de Césium 137. En effet, le  $^{137}\text{Cs}$  a une période de 30,2 ans et sa principale émission bêta (95 %) a une énergie maximum égale à 0,512 Mev.

Nous pouvons disposer d'une solution dont la concentration en activité est égale à  $0,815 \text{ MBq} \cdot \text{cm}^{-3}$ , ce qui permet d'optimiser l'activité spécifique des particules compte tenu de l'activité totale manipulable et du volume de solution nécessaire. Par ailleurs, ce radioélément possède une radiotoxicité modéré (groupe 3) donc l'activité totale manipulable dans notre installation est également optimisée.

En revanche, pour les radioéléments émetteurs alpha il nous paraît difficile de réaliser des expériences permettant de mettre en évidence un auto-chargement de l'aérosol. En effet, le taux d'ionisation obtenu avec les émetteurs alpha est généralement très supérieur à celui des émetteurs bêta, et le critère de charge (eq.1.76) nous obligerait alors à produire des particules ayant des activités spécifiques importantes pour observer un auto-chargement. Or, les radioéléments émetteurs alpha ont généralement une radiotoxicité très forte (groupe 1), en conséquence, l'activité manipulable dans notre installation serait réduite. De plus, les solutions contenant les émetteurs alpha sont généralement composées d'acide nitrique à 1 Mol/l, elles sont donc très corrosives et la concentration en impuretés est supérieure à celle des solutions contenant les émetteurs bêta. C'est pourquoi nous ne les utiliserons pas.

- Caractéristiques de l'aérosol radioactif

Nous dimensionnons donc les paramètres de l'aérosol radioactif à partir de l'activité maximum manipulable, des possibilités du générateur à orifice vibrant et des caractéristiques des solutions radioactives disponibles. Rappelons que nous cherchons à produire des particules avec une activité spécifique suffisante pour observer un auto-chargement de l'aérosol. Par ailleurs, les aérosols doivent avoir un diamètre et une concentration compatibles avec nos systèmes d'analyse de la distribution des charges électriques.

Finalement, d'après nos contraintes expérimentales, nous déterminons les paramètres suivants pour la production de l'aérosol radioactif :

- Activité de la solution radioactive de  $^{137}\text{Cs}$  : environ 1,5 MBq.
- Volume de la solution radioactive : 5 ml.
- Fréquence du générateur d'aérosol 60 kHz.
- Débit de solution  $0,139 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$ .
- Diamètre des gouttelettes : 42  $\mu\text{m}$ .
- Débit de l'aérosol : 50-70 l/min.

Nous aboutissons alors aux caractéristiques suivantes pour notre aérosol.

- Activité spécifique des particules  $\eta \approx 0,013 \text{ Bq p}^{-1}$  (eq. 4.4).
- Concentration théorique de l'aérosol :  $C_t \approx 50 \text{ p. cm}^{-3}$  (eq. 4.3)
- Diamètre des particules : environ  $1 \mu\text{m}$  (d'après la composition de la solution de HCl).
- Nombre de paires d'ions créées par désintégration pour le  $^{137}\text{Cs}$  :  $I \approx 5000 \text{ p.i. dès}^{-1}$  (eq.1.11 et 1.12).
- Temps disponible pour la génération : environ 10 min (d'après le volume et le débit de solution nécessaire pour le générateur).

## II.2. *L'évolution et l'échantillonnage de l'aérosol radioactif*

- Position du problème

Rappelons que la distribution des charges électriques d'un aérosol radioactif dépend de ses caractéristiques physiques, mais aussi des conditions de son évolution. En conséquence, nous devons maîtriser celles-ci dans notre dispositif expérimental. Ces principales conditions sont :

- la distribution initiale des charges électriques de l'aérosol,
- le temps d'évolution de l'aérosol,
- l'échantillonnage de l'aérosol entre la production et la mesure, notamment les paramètres géométriques.

Signalons que la distribution initiale des charges électriques de l'aérosol est un paramètre important. En effet, cette distribution doit être bien connue, car c'est une référence pour discerner une variation due à la radioactivité de l'aérosol. Pour obtenir une distribution initiale des charges répétable et bien caractérisée, nous utilisons une source radioactive de  $^{85}\text{Kr}$ .

Afin de poursuivre notre dimensionnement, nous supposons que la distribution des charges initiale de l'aérosol ne dépend pas de sa radioactivité et qu'elle est décrite par le modèle de Clement et Harrison (1992) (eq. 1.45) pour un paramètre asymétrie égal à 0,80. Nous exposerons plus en détail cette étape dans la validation en inactif du dispositif expérimental.



Compte tenu des caractéristiques de l'aérosol radioactif que nous pouvons produire, nous mettons en évidence deux obstacles que nous aurons à surmonter pour mener à bien notre étude.

En considérant l'activité spécifique des particules et le nombre de paires d'ions créées par désintégration, l'observation d'un autochargement suppose alors de travailler avec une concentration d'aérosol incompatible avec nos systèmes classiques d'analyses de la distribution des charges électriques. En effet, en utilisant le critère de charge défini dans le premier chapitre (eq. 1.76), nous constatons que cette concentration doit être inférieure à  $0,3 \text{ p. cm}^{-3}$ . Par ailleurs, pour une si faible concentration de l'aérosol Clement *et al.* (1994) ont montré que leur théorie générale (Clement et Harrison, 1992) n'est pas valable, notamment du fait de l'inhomogénéité des concentrations ioniques dans le milieu.

Notre second obstacle est lié au temps disponible pour la génération de l'aérosol. En effet, ce temps est inférieur à ceux de mise à l'état stationnaire et d'analyse de la distribution des charges.

Pour résoudre ces problèmes nous devons considérer l'échantillonnage de l'aérosol. Afin d'accroître son auto-chargement, nous pouvons réduire le nombre de paires d'ions créées par désintégration (I), en limitant le trajet des rayonnements bêta grâce à une géométrie de l'échantillonnage adéquate. Par ailleurs, pour concilier les temps de génération et d'analyse, nous devons mettre en œuvre un réservoir d'aérosols.

- La réduction de l'intensité d'ionisation

Nous devons donc déterminer un facteur de réduction du nombre de paire d'ions créées par désintégration permettant d'observer un auto-chargement significatif, pour une concentration d'aérosol compatible avec nos systèmes de production et d'analyse. Pour y parvenir, nous utilisons le modèle de Clement et Harrison (1992) (eq. 1.72 et 1.74) en faisant les hypothèses suivantes :

- la concentration en ions est déterminée par le mécanisme de recombinaison (eq. 1.58),
- la concentration de l'aérosol est égale à  $10 \text{ p. cm}^{-3}$ ,
- l'activité spécifique des particules est égale à  $0,013 \text{ Bq p}^{-1}$ ,

- le diamètre de l'aérosol est égal à  $0,63 \mu\text{m}$  (cette valeur est déterminée d'après des essais préliminaires en utilisant un aérosol simulant),
- le paramètre d'asymétrie des ions est constant et est égal à  $0,80$ .

Nous représentons sur la figure 4.2, la distribution des charges électriques de l'aérosol supposé inactif, puis celles de l'aérosol radioactif pour deux valeurs de  $I$ , respectivement égales à  $5000$  et à  $100 \text{ p.i. d}\ddot{\text{e}}\text{s}^{-1}$ . La valeur  $I=5000 \text{ p.i. d}\ddot{\text{e}}\text{s}^{-1}$  correspond au nombre maximum de paires d'ions produites par désintégration pour le  $^{137}\text{Cs}$  sur le parcours total du rayonnement bêta.

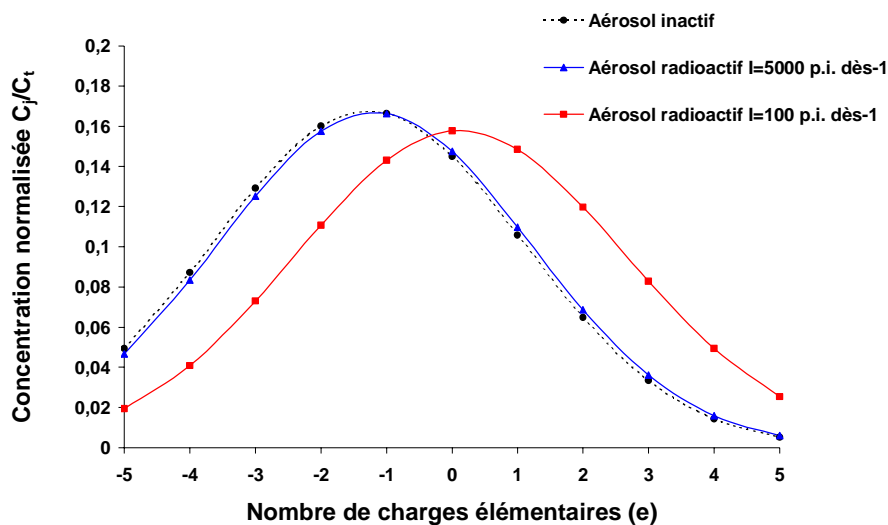


Figure 4.2 - Variation de la distribution des charges électriques en fonction du nombre de paires d'ions créées par désintégrations.

Nous voyons que la distribution des charges électriques de l'aérosol inactif est décalée vers des valeurs négatives, car elle est déterminée par le paramètre d'asymétrie qui est supposé égal à  $0,80$ . La charge moyenne obtenue dans ce cas est  $J=-1,18 e$ .

Nous constatons que pour une valeur de  $I=5000 \text{ p.i. d}\ddot{\text{e}}\text{s}^{-1}$ , la distribution des charges de l'aérosol radioactif est très légèrement décalée vers des valeurs positives par rapport à celle de l'aérosol inactif. Toutefois, ce décalage est trop faible pour être mis en évidence expérimentalement. En revanche, nous constatons que la distribution des charges obtenue pour  $I=100 \text{ p.i. d}\ddot{\text{e}}\text{s}^{-1}$  montre un auto-chargement significatif de l'aérosol. En effet, la charge moyenne de l'aérosol est alors égale à  $+0,16 e$ , et une telle variation par rapport à l'aérosol inactif est discernable par nos moyens de mesures.

Evaluons maintenant, la longueur de parcours nécessaire au rayonnement bêta pour obtenir une valeur de I égale à 100 p.i. dès<sup>-1</sup>.

Nous avons expliqué dans le premier chapitre que le parcours des électrons dans la matière est complexe. Il est caractérisé par un coefficient d'absorption linéaire  $\mu_a$  (cm<sup>-1</sup>) (eq. 1.8). L'inverse de ce coefficient correspond à une distance caractéristique de pénétration dans l'air du rayonnement, pour le <sup>137</sup>Cs elle est égale à 23 cm, et nous considérons que tout les ions (5000 paires) sont produits uniformément sur cette distance. La longueur permettant d'obtenir seulement 100 p.i. dès<sup>-1</sup> est donc 0,46 cm.

Rappelons cependant, que Clement et Harrison (1992) ont montré que le parcours moyen d'un rayonnement supposé rectiligne dans un conduit cylindrique est égal au produit du rayon du tube par  $\pi/2$  (eq. 1.60). En conséquence, pour obtenir une production d'environ 100 paires d'ions par désintégration, nous devons faire évoluer notre aérosol de <sup>137</sup>Cs dans un tube de 0,3 cm de rayon ( $0,46=0,3 \cdot \frac{\pi}{2}$ ).

- Le volume d'échantillonnage

A partir de ces éléments, nous pouvons concevoir un volume d'échantillonnage de l'aérosol radioactif qui est composé d'une partie réservoir et d'une partie vieillissement.

Le volume du réservoir d'aérosol, est déterminé en fonction du temps nécessaire pour mesurer la distribution des charges électriques et du débit de prélèvement de l'aérosol. Pour un volume de 36 l et un débit de 0,3 l/min, le temps de renouvellement est d'environ 2 heures, ce qui est suffisant pour l'analyse.

Le volume de vieillissement de l'aérosol est constitué d'un ensemble de tubes de 0,3 cm de rayon permettant ainsi, de limiter le nombre de paires d'ions produits à chaque désintégration.

Signalons que les dimensions de ce volume doivent permettre d'obtenir un temps d'évolution de l'aérosol supérieur au temps caractéristique du processus de charge électrique (eq. 1.76), afin d'atteindre l'état stationnaire. Rappelons que ce temps augmente lorsque la concentration en ions diminue, et donc lorsque I diminue. En effet, dans le cas des distributions représentées figure 4.2 le temps caractéristique passe de 10 s à 110 s lorsque I varie entre 5000 et 100 p.i. dès<sup>-1</sup>.

Le temps d'évolution de l'aérosol dans le volume de vieillissement est déterminé par le débit de prélèvement, la section et la longueur de la batterie de tubes. Ainsi pour un assemblage de 170 tubes de 0,6 cm de diamètre et de 80 cm de hauteur, nous obtenons un temps de résidence égal à environ 770 s pour un débit de prélèvement égal à 0,3 l/min.

Nous représentons sur la figure 4.3 le schéma du volume d'échantillonnage que nous réalisons d'après nos contraintes.

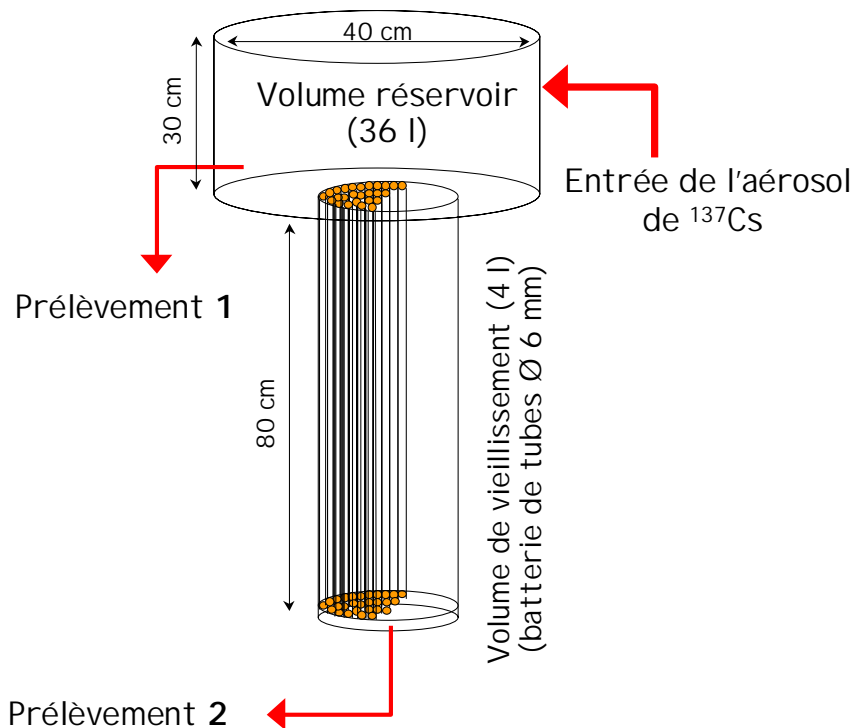


Figure 4.3 - Schéma du volume d'échantillonnage de l'aérosol radioactif.

Compte tenu des différences notables entre les temps et les débits respectifs de production et d'analyse de l'aérosol radioactif, l'échantillonnage de l'aérosol s'effectue en deux étapes distinctes. La première consiste à remplir de façon homogène le volume d'échantillonnage avec l'aérosol radioactif. La seconde consiste à prélever et à analyser cet aérosol. soulignons que notre système permet de prélever l'aérosol soit dans le volume réservoir, soit dans le volume de vieillissement.

### II.3. L'analyse de la distribution des charges électriques de l'aérosol

Notre système de mesure doit permettre d'analyser un aérosol faiblement concentré d'un diamètre d'environ 1  $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, notre méthode de mesure doit être suffisamment rapide, compte tenu de la quantité d'aérosol disponible dans le volume réservoir et du débit d'analyse.

Nous connaissons principalement deux techniques performantes, permettant de déterminer la distribution des charges électriques d'un aérosol radioactif : le dépôt de particules dans un précipitateur électrostatique associé au comptage radioactif, et le spectromètre de mobilité électrique différentiel associé à un compteur de particules. Rappelons les avantages et les inconvénients de ces techniques pour l'analyse de la distribution des charges d'un aérosol radioactif.

- Le dépôt de particules dans un précipitateur électrostatique

Cette technique a été utilisée par Yeh *et al.* (1976) pour l'étude de la charge des aérosols radioactifs de  $^{198}\text{Au}$  et de  $^{238}\text{PuO}_2$ , et par Pourprix (1973) dans le cas de l'étude des aérosols non radioactifs en milieu faiblement ionisé. Elle consiste à réaliser des dépôts distincts de particules sur une plaque de collection, suivant leur état de charge électrique. Cependant, les techniques d'analyse des dépôts radioactifs sont difficiles à mettre en œuvre et nécessitent la manipulation et le transfert d'échantillons contaminants.

Par exemple, si la plaque de collection est constituée d'un film radiosensible, il faut analyser les traces à l'aide d'un microscope ou d'un système de caméra vidéo. En revanche, si l'analyse des dépôts s'effectue par comptage radioactif, les surfaces de collection doivent être prédéfinies. Il est alors nécessaire de bien connaître, à priori, le diamètre de l'aérosol à analyser. Par ailleurs, la géométrie du détecteur doit être compatible avec les surfaces de collection, et la détermination précise de la quantité de particules collectées nécessite un étalonnage préalable du système afin de prendre en compte le rendement du détecteur.

Compte tenu de ces éléments, il nous paraît difficile de mettre en œuvre un tel système de mesure dans notre dispositif expérimental, c'est pourquoi nous nous tournons vers l'analyseur différentiel de mobilité électrique.

- L'analyseur différentiel de mobilité électrique

Nous avons déjà appliqué cette technique dans le chapitre 3 lors de l'analyse des aérosols non radioactifs. En ce qui concerne les aérosols radioactifs, cette technique présente l'avantage d'être automatique, et elle ne nécessite pas la manipulation d'échantillons contaminants. Par ailleurs, nous pouvons utiliser ce même système pour déterminer le diamètre de l'aérosol et nous disposons d'un CNC pour déterminer sa concentration. Néanmoins, cette technique de mesure est relativement longue, car les différentes fractions de particules sont analysées successivement, contrairement au précipitateur électrostatique où les dépôts s'effectuent simultanément.

#### II.4. Schéma du dispositif expérimental

Nous représentons figure 4.4 le schéma du dispositif expérimental que nous avons conçu et réalisé. Il regroupe le générateur d'aérosols, le volume d'échantillonnage et le système d'analyse de la distribution des charges électriques.

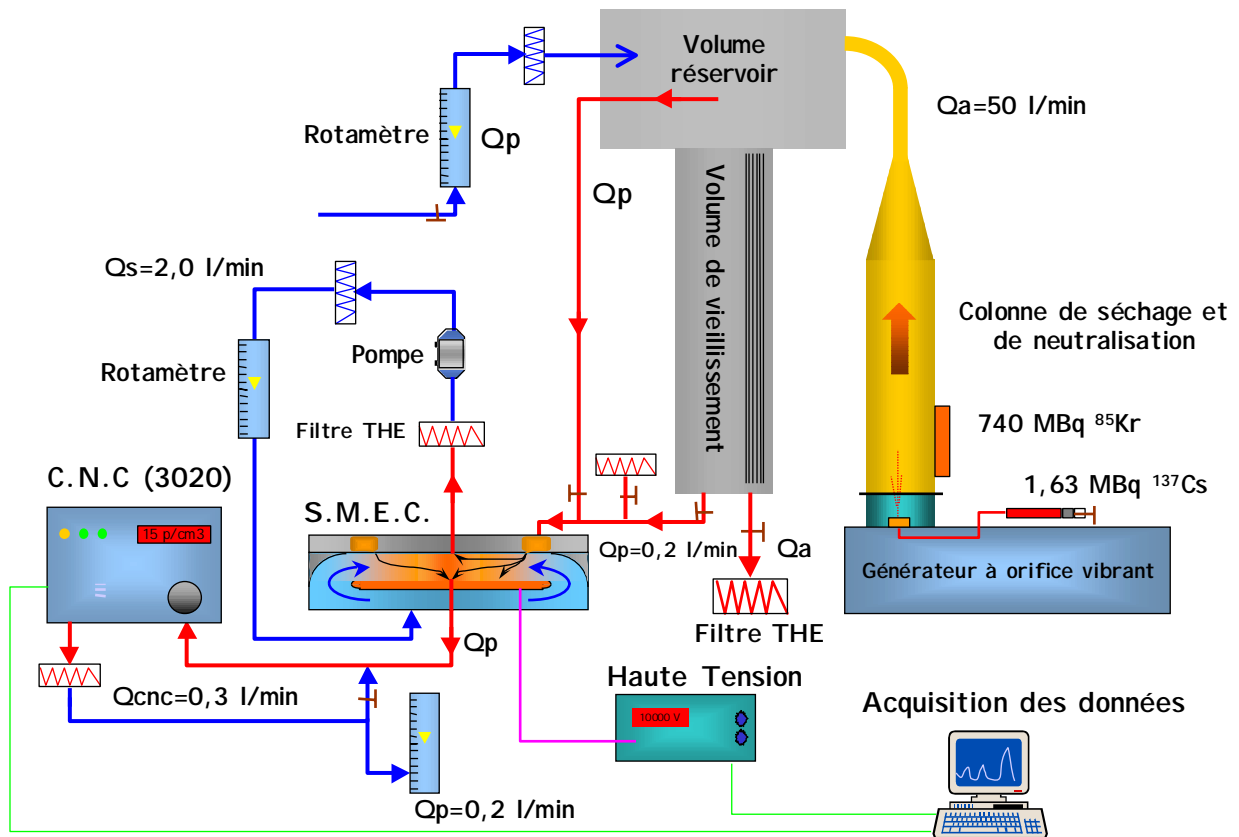


Figure 4.4 - Schéma du dispositif expérimental pour l'étude de la charge électrique des aérosols radioactifs.

L'aérosol radioactif monodispersé est produit par le générateur à orifice vibrant. Il est "neutralisé" par les petits ions produits par la source de  $^{85}\text{Kr}$ , puis il est injecté dans le volume d'échantillonnage. Ce volume est balayé par le débit d'aérosol jusqu'à l'obtention d'une concentration stable, l'extraction du volume s'effectuant à travers un filtre THE. Une fois que le volume réservoir est "rempli", nous arrêtons le système de génération et nous procédons à l'analyse de l'aérosol contenu dans le volume d'échantillonnage.

Nous pouvons effectuer le prélèvement de l'aérosol, soit directement dans le volume réservoir, soit à l'extrémité du volume de vieillissement. La comparaison des analyses permet ainsi de mettre en évidence l'influence de la réduction du nombre de paires d'ions produites par désintégration sur l'état de charge électrique de l'aérosol radioactif.

Le débit de prélèvement de l'aérosol est compensé par un débit équivalent d'air filtré, celui-ci étant injecté dans le volume réservoir. Il en résulte une décroissance de la concentration de l'aérosol qui est fonction du taux de renouvellement dans ce volume.

Dans nos expériences, la première analyse consiste à mesurer la concentration totale de l'aérosol puis à déterminer son diamètre. Pour cela, nous déterminons la mobilité des particules portant une charge élémentaire, ce qui permet également de vérifier la monodispersion de l'aérosol. Par ailleurs, cette étape permet de laisser évoluer la distribution des charges électriques de l'aérosol. Nous déterminons ensuite les distributions en mobilités électriques des particules positives et négatives. Cette analyse est effectuée en prélevant l'aérosol dans le réservoir ou dans le volume de vieillissement. Dès que l'expérience est achevée, nous effectuons une purge aéraulique du volume d'échantillonnage.

Avant de confiner notre dispositif expérimental et d'effectuer les expériences avec un aérosol radioactif, nous devons valider le fonctionnement de notre système en "inactif" et adapter nos techniques et nos systèmes de façon à pouvoir les mettre en œuvre dans une boîte à gants.

### III. Validation en inactif du dispositif expérimental

#### III.1. *La génération de l'aérosol non radioactif simulant*

Il s'agit de mettre au point une méthode répétable de production de l'aérosol compte tenu des contraintes expérimentales. Nous devons également caractériser avec précision les différents paramètres de l'aérosol radioactif que nous allons produire, c'est à dire : son diamètre, sa concentration et sa monodispersion. Pour cela, nous utilisons une solution simulante de la solution radioactive.

- Caractéristiques de la solution simulante

Rappelons que le diamètre des particules est déterminé par le diamètre des gouttelettes et la concentration en impuretés de la solution. De ce fait, notre solution simulante doit contenir la même concentration en impuretés non volatiles pour être représentative de la solution radioactive.

Les solutions radioactives sont généralement constituées d'un "entraîneur" dans lequel est mis en solution le radioélément désiré. Par exemple, pour obtenir une solution de  $^{137}\text{Cs}$ , l'entraîneur est composé d'une solution d'acide chlorhydrique à 0,1 Mol/l dans laquelle on rajoute du chlorure de césium à une concentration de  $10 \mu\text{g g}^{-1}$ . Le CsCl inactif est utilisé pour saturer la paroi du flacon contenant la solution, afin d'empêcher l'adsorption du césium radioactif sur celle-ci. Ce moyen permet ainsi de conserver avec précision la concentration du radioélément dans la solution.

D'après les concentrations en activité des solutions radioactives disponibles et l'activité massique ("poids du Curie") du radioélément choisi, nous calculons que la concentration volumique du radionucléide est négligeable par rapport à celle des impuretés présentes dans la solution d'entraînement. En conséquence, il nous suffit d'utiliser une solution simulante ayant les mêmes caractéristiques que l'entraîneur utilisé pour la fabrication de la solution radioactive.

Pour produire cette solution simulante, nous utilisons une procédure similaire à celle utilisée par le fabricant de solution radioactive pour produire l'entraîneur. Signalons toutefois, que le fabricant ne peut pas nous garantir la concentration en impuretés de la solution radioactive finale par rapport à celle de l'entraîneur.



- Production et granulométrie de l'aérosol simulant

Le générateur à orifice vibrant permet de produire un aérosol à partir d'un faible volume de solution, égal à environ 50 ml. Toutefois, ce volume est trop élevé pour obtenir une activité spécifique de la solution suffisamment forte, ceci compte tenu de l'activité totale manipulable pour notre expérience. Nous adaptons alors le générateur pour fonctionner avec un volume total beaucoup plus faible, de l'ordre de 5 ml. Pour cela, nous réduisons au minimum les volumes morts présents dans le circuit hydraulique de la solution radioactive, et nous installons une vanne qui permet de réguler la pression du circuit et ainsi de réduire le temps de stabilisation du jet liquide après sa formation.

Nous mettons ainsi au point un mode opératoire pour produire de façon répétable un aérosol en utilisant un volume total de solution égal à 5 ml.

Pour étudier la granulométrie de l'aérosol simulant, nous utilisons un "Aerodynamic Particle Sizer" (APS). Cet appareil permet de déterminer le diamètre aérodynamique des particules dans une gamme de dimensions comprises entre 0,5  $\mu\text{m}$  et 20  $\mu\text{m}$ . Son principe de fonctionnement est le suivant : l'aérosol échantillonné est accéléré en passant à travers un petit orifice; du fait de leur inertie, les particules vont avoir une vitesse inférieure à celle du gaz porteur à la sortie de l'orifice. Cette différence de vitesse est fonction du temps de relaxation de la particule donc de son diamètre aérodynamique (Renoux et Boulaud, 1998), et elle augmente avec le diamètre des particules. A la sortie de l'orifice, deux faisceaux laser permettent de mesurer le temps de vol de chaque particule échantillonnée, un étalonnage de l'appareil permet de relier celui-ci au diamètre aérodynamique des particules.

Nous représentons sur la figure 4.5 la distribution granulométrique de notre aérosol simulant. Le débit d'aérosol du générateur à orifice vibrant est égal à 50 l/min, la fréquence de la céramique est égale à 59,86 kHz et le débit de solution à travers le micro orifice est égal à 0,139  $\text{cm}^3 \text{min}^{-1}$ . Pour ces paramètres, le diamètre des gouttelettes produites est égal à 42  $\mu\text{m}$  (eq. 4.1).

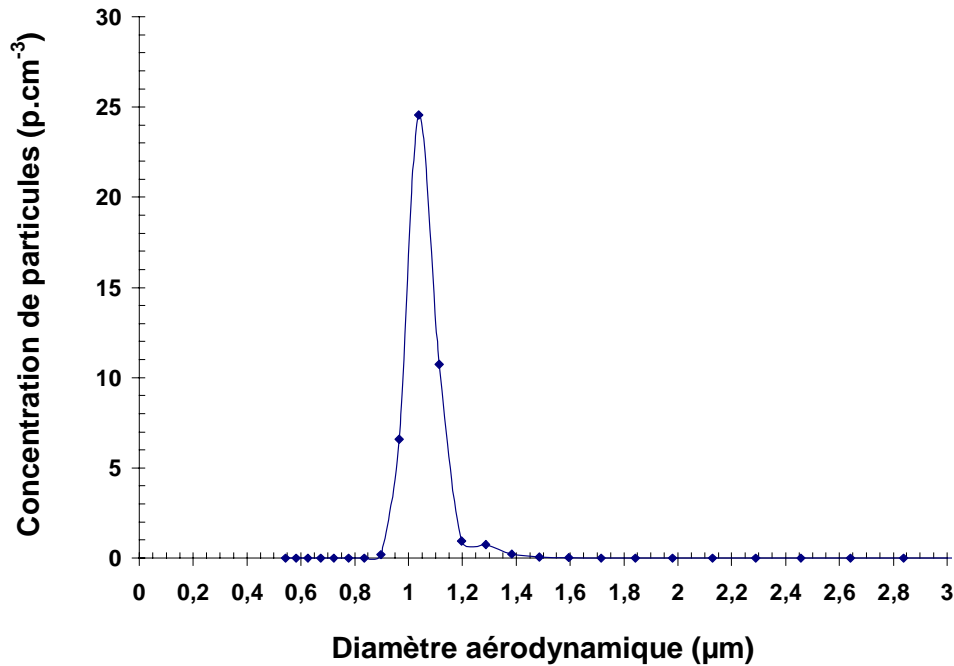


Figure 4.5 - Distribution granulométrique de l'aérosol simulant.

Notre aérosol simulant a un diamètre aérodynamique médian égal à 1,07 µm, un écart type géométrique égal à 1,06 et une concentration totale de 43 p cm<sup>-3</sup>.

Signalons que l'écart type géométrique a un sens physique lorsque la distribution granulométrique de l'aérosol suit une loi log-normale, ce qui n'est pas notre cas. Pour qualifier la monodispersion de notre aérosol il est alors plus juste d'utiliser le coefficient de variation du diamètre des particules. Dans nos expériences il est inférieur à 6 %.

Soulignons que le diamètre aérodynamique de l'aérosol ( $d_a$ ) peut être très différent du diamètre réel des particules ( $d_p$ ) lorsque leur densité ( $\theta$ ) est différente de 1. Ces diamètres sont alors reliés par l'expression :

$$d_a = \sqrt{\frac{Cu(d_p)}{Cu(d_a)}} \cdot \sqrt{\theta} \cdot d_p, \quad (4.5)$$

où  $Cu(d_p)$  et  $Cu(d_a)$  représentent les coefficients de corrections de Cunningham (eq. 1.2) pour les diamètres  $d_p$  et  $d_a$ .

Pour nos expériences, il est nécessaire de connaître le diamètre réel des particules, car c'est lui qui vas nous permettre de représenter le modèle théorique. Par ailleurs, le diamètre de

l'aérosol simulant peut être légèrement différent de celui de l'aérosol radioactif. Pour ces raisons, nous réalisons un étalonnage de notre SMEC différentiel permettant de relier la tension de sélection des particules portant une seule charge électrique à leur diamètres. L'étalonnage du système s'effectue en utilisant des sphères de latex. Le diamètre déterminé sera donc un diamètre équivalent en mobilité à des particules sphériques. Nous présentons la procédure d'étalonnage et les résultats obtenus dans l'annexe C.

- Mesure de la densité des particules

Pour quantifier précisément l'effet de la sédimentation de l'aérosol radioactif dans notre dispositif expérimental, il est important de connaître son diamètre aérodynamique auquel la vitesse limite de chute des particules est directement reliée. Pour le calculer à partir de la mesure du diamètre réel, nous devons donc connaître la densité des particules. Nous réalisons cette mesure avec deux techniques différentes.

La première repose uniquement sur l'effet de la gravité dans les SMEC. En nous basant sur les travaux effectués par Le Bronnec (1998) et Le Bronnec *et al.* (1999) nous appliquons la méthode de mesure établie, en utilisant un SMEC d'ordre 1. Nous présentons celle-ci ainsi que les résultats obtenus sur la mesure de la densité de l'aérosol simulant dans l'annexe D.

La densité des particules obtenue avec cette méthode est égale à 2,05.

La seconde méthode consiste à déterminer, d'une part, le diamètre aérodynamique à l'aide de l'APS, d'autre part, le diamètre réel des particules à l'aide du SMEC. En utilisant la relation (4.5) avec une méthode itérative, nous pouvons alors calculer la densité des particules.

Par cette méthode, nous obtenons une densité égale à 2,50. Nous constatons un écart relatif d'environ 20 % entre les résultats des deux mesures, que nous attribuons principalement à une incertitude importante sur la mesure réalisée grâce à l'effet de gravité dans le SMEC, car nos conditions d'opérations ne sont pas idéales.

En retenant donc la densité déterminée par la combinaison de l'APS et du SMEC soit  $\theta=2,50$ , nous obtenons pour le diamètre aérodynamique représenté figure 4.5 ( $d_a=1,07 \mu\text{m}$ ), un diamètre réel  $d_p=0,67 \mu\text{m}$ .

### III.2. *La neutralisation de l'aérosol*

Rappelons que les particules produites par le générateur à orifice vibrant sont très fortement chargées. Pour réduire ou "neutraliser" cet état de charge électrique, nous utilisons une source de  $^{85}\text{Kr}$  qui permet de produire des petits ions bipolaires. Cette source est positionnée sur la colonne où s'effectue l'entraînement et le séchage des gouttelettes (fig 4.6).

Nous avons vu que ce système permet de réduire les dépôts de particules pendant l'échantillonnage, mais aussi d'obtenir un état initial de charge électrique reproductible.

Afin d'étudier avec précision cette distribution initiale des charges, nous examinons également les propriétés des ions en utilisant le système de mesure du paramètre d'asymétrie présenté dans le chapitre 2.

- Caractéristiques de la source radioactive

Il existe un système de neutralisation utilisant une source de  $^{85}\text{Kr}$  spécifiquement adapté au générateur à orifice vibrant, commercialisé par la firme TSI. Toutefois, ce système est très onéreux et, de plus, il n'est pas maniable facilement dans une boîte à gants. Or, la source radioactive que nous utilisons doit être facilement démontable afin d'être évacuée une fois que les expériences sont réalisées. Ceci afin de perturber le moins longtemps possible les autres installations, sensibles au rayonnement, qui sont présentes dans la zone contrôlée.

C'est pour cela que nous avons conçu et réalisé une colonne de séchage avec un support de source radioactive spécialement adapté pour notre étude expérimentale. Cette colonne est constituée d'un conduit cylindrique en acier inoxydable de 650 mm de hauteur et de 100 mm de diamètre. Nous fixons sur la colonne une source scellée de  $^{85}\text{Kr}$  ayant une activité égale à 740 MBq (20 mCi). L'activité de la source doit permettre de produire une concentration en ions suffisante pour "neutraliser" efficacement l'aérosol, ceci compte tenu de son temps de séjour avec les ions.

La fenêtre d'émission des rayonnements a une longueur de 76 mm et une largeur de 10 mm. Soulignons, qu'elle se trouve en contact direct avec l'aérosol radioactif à l'intérieur de la colonne de séchage. Pour éviter la contamination de notre source scellée nous l'enveloppons avec une feuille de mylar étanche.

Par ailleurs, du fait de l'activité importante et de la nature des rayonnements de cette source, il existe un débit de dose non négligeable à son voisinage. Comme l'emploi du générateur nécessite la proximité de l'opérateur, nous disposons un écran de plomb de 5 mm d'épaisseur autour de la colonne de séchage et de la source. Nous représentons dans l'annexe E les mesures de dosimétrie que nous effectuons pour évaluer l'exposition au rayonnement de l'opérateur.

- Mesure du paramètre d'asymétrie et des concentrations ioniques

Pour mesurer le paramètre d'asymétrie, les concentrations et les mobilités des petits ions produits par la source de  $^{85}\text{Kr}$ , nous réalisons le montage expérimental représenté sur la figure 4.6.

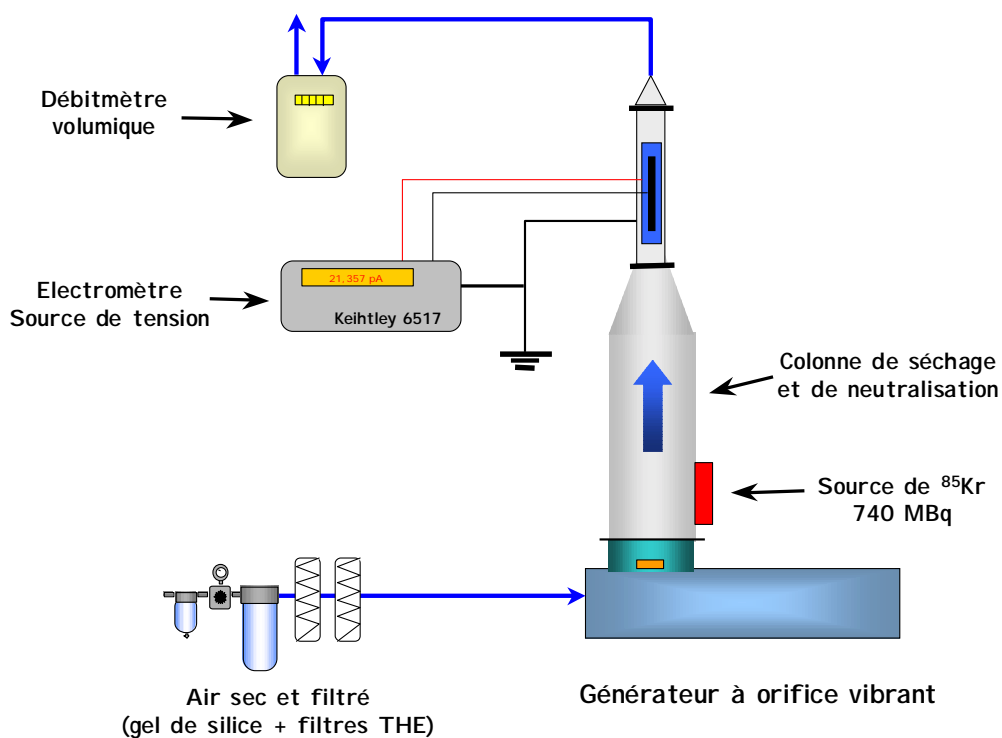
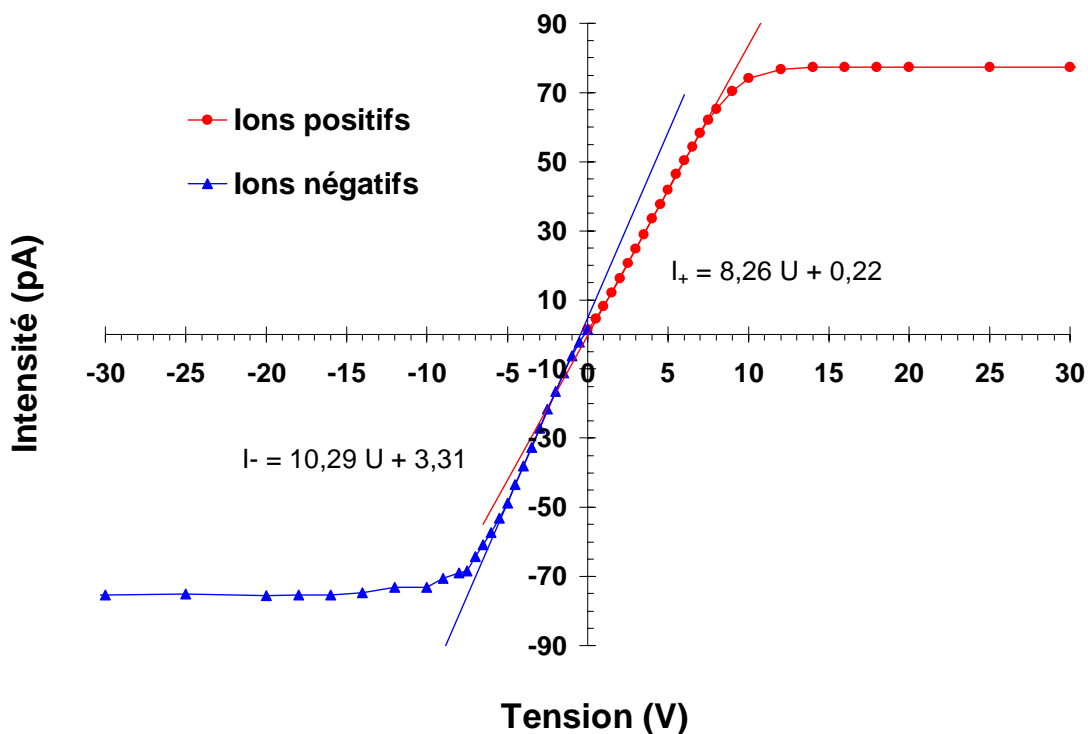


Figure 4.6 - Montage expérimental pour la mesure du paramètre d'asymétrie obtenu avec la source de neutralisation du générateur à orifice vibrant.

Le générateur à orifice vibrant est alimenté en air sec et filtré. L'air entraîne les petits ions formés par l'action du rayonnement bêta de la source de  $^{85}\text{Kr}$  dans la colonne de séchage, puis dans le condensateur cylindrique, celui-ci étant fixé à l'extrémité de la colonne. Le débit volumique traversant l'ensemble est déterminé par un compteur à gaz (Gallus). Nous utilisons un électromètre Keithley (6517) pour mesurer le courant d'ions, l'appareil comprenant également une source de tension.

Nous représentons sur la figure 4.7 l'évolution du courant d'ions collectés sur l'électrode de mesure du condensateur en fonction de la tension. Ce résultat est obtenu pour un débit égal à 54,3 l/min.



**Figure 4.7** - Mesure du paramètre d'asymétrie entre les ions produits par le système de neutralisation du générateur à orifice vibrant.

Rappelons que le paramètre d'asymétrie est déterminé en effectuant le rapport des pentes des caractéristiques respectives des ions positifs et négatifs. Nous obtenons ainsi une valeur  $X=0,80$ .

Nous représentons dans le tableau 4.1 les concentrations et les mobilités électriques des petits ions positifs et négatifs déterminés à partir de la figure 4.7.

Tableau 4.1 - Concentrations et mobilités électriques des ions produits dans le système de neutralisation du générateur à orifice vibrant.

	Ions positifs	Ions négatifs
Concentrations ( $\text{cm}^{-3}$ )	$5,34 \times 10^5$	$5,21 \times 10^5$
Mobilités électriques ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )	1,19	1,54

Signalons que les concentrations en ions positifs et négatifs sont déterminées à l'extrémité de la colonne, tandis que la zone de production est située à la base de celle-ci. En conséquence, nos mesures sous-estiment les concentrations réelles en ions dans la colonne, du fait de leur recombinaison. Nous avons déjà mis en évidence ce fait dans le chapitre 2, lors de l'étude du neutraliseur utilisant les sources émettrices alpha d'Américium 241.

- Efficacité de la neutralisation

Pour qualifier l'efficacité de notre système quant à la neutralisation de l'aérosol, nous utilisons le critère défini par Liu et Pui (1974a). Bien que nous l'ayons déjà présenté dans le chapitre 1, rappelons que pour neutraliser l'aérosol, il suffit que le produit de la concentration totale des ions ( $n_i$ ) par le temps de résidence ( $t$ ) de l'aérosol soit supérieur à  $6 \times 10^6 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}$ .

D'après nos mesures expérimentales, la concentration totale des ions à l'extrémité de la colonne est égale à  $1,06 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$ , et le temps de résidence de l'aérosol dans la colonne est d'environ 5 s pour un débit de 54,3 l/min. Nous obtenons ainsi un produit  $n_i \times t = 5,3 \times 10^6 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}$ , légèrement inférieur à la valeur indiquée par Liu et Pui (1974a). Cependant, comme nous l'avons déjà mentionné, nos mesures sous-estiment la concentration réelle des ions dans l'ensemble de la colonne. Nous pouvons donc considérer que la condition de neutralisation est bien vérifiée.

### III.3. *La mesure de la distribution des charges électriques initiale de l'aérosol*

Il s'agit de mettre en œuvre le système de mesure de la distribution des charges utilisant le SMEC différentiel déjà présenté dans le chapitre 3 (fig 3.3) pour la mesure de l'aérosol radioactif.

Rappelons que nous devons analyser un aérosol ayant une faible concentration ( $\approx 10 \text{ p.} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) et que le temps disponible est limité par la capacité de notre volume réservoir. Nous devons donc mettre au point une méthode de mesure spécifique pour répondre à ces contraintes.

- Méthode de mesure de la distribution en mobilités électriques de l'aérosol

La méthode "classique" de mesure de la distribution des charges repose sur la détermination des distributions en mobilités électriques des particules positives et négatives, et l'utilisation de la fonction de transfert du SMEC. Toutefois, cette méthode est longue.

Pour réduire le temps d'analyse nous diminuons, d'une part, le temps nécessaire pour déterminer la concentration des particules sélectionnées par le SMEC, d'autre part, le temps nécessaire pour examiner l'ensemble du spectre de mobilités de l'aérosol.

La méthode employée pour déterminer le plus rapidement possible la concentration des particules sélectionnées consiste à effectuer le comptage une à une des particules traversant le volume de mesure du CNC. Nous pouvons alors déterminer la concentration en fonction, du nombre de particules comptées, du débit et du temps de prélèvement. Cette méthode a l'avantage d'être indépendante du temps de réponse du CNC. Par ailleurs, elle permet de diminuer sensiblement le temps de latence à imposer entre la succession des mesures.

Pour effectuer le comptage des particules, nous analysons directement le signal fourni par le photodétecteur du CNC. Nous développons ainsi un nouveau programme d'acquisition des données permettant de piloter notre dispositif expérimental. Ce programme permet de distinguer les impulsions du photodétecteur correspondant à des particules et de discriminer



ces impulsions compte tenu de leur durée et de la fréquence d'acquisition du système. Signalons que nous pouvons ajuster le temps de comptage en fonction de la concentration de l'aérosol, ceci afin obtenir une statistique de comptage acceptable.

Afin de diminuer le temps de balayage du spectre de mobilités électriques de l'aérosol, nous devons réduire le nombre de points de mesure nécessaire à sa détermination. Dans la méthode "classique", nous appliquons un incrément de tension régulier pour parcourir le spectre de mobilités (fig 3.4). Pour diminuer le nombre de points de mesure, nous devons donc choisir un pas de tension plus important. Toutefois, ce pas doit être suffisamment faible pour discriminer les mobilités électriques des particules possédant plusieurs charges électriques. Pour choisir ce pas de tension, nous nous appuyons sur la méthode d'inversion de données établie par Knutson (1976) permettant de calculer la distribution granulométrique d'un aérosol à partir de sa distribution en mobilités électriques.

L'auteur applique un pas de tension variable pour sélectionner successivement les particules de même diamètre ayant des charges multiples. Ce pas de tension est fonction d'une suite géométrique dont la raison est définie par le nombre de charges que nous voulons discriminer. Ainsi, lorsque la variation de la tension (U) s'effectue selon une suite géométrique de raison égale à 1,1053 nous avons la relation :

$$U_{i+1}=1,1053 U_i, \quad (4.6)$$

nous obtenons alors les incréments particulier de la suite :

$$U_{i+7} = 2,015 U_i \cong 2 U_i,$$

$$U_{i+11} = 3,008 U_i \cong 3 U_i,$$

$$U_{i+14} = 4,062 U_i \cong 4 U_i,$$

$$U_{i+16} = 4,962 U_i \cong 5 U_i,$$

Ces incréments de tension correspondent à la sélection des particules dont les mobilités électriques sont des multiples entier de la mobilité définie par le  $i^{\text{ème}}$  terme de la suite. Dans le cas d'un aérosol monodispersé, ces incréments correspondent uniquement à la sélection de particules de charges différentes.

Nous appliquons cette méthode pour déterminer la distribution en mobilités de notre aérosol simulant lors de sa production. Pour cela, nous opérons avec un volume de solution simulante suffisamment important pour disposer d'un temps de génération de l'aérosol plus grand que le temps d'analyse de la charge électrique, ce qui nous permet d'effectuer une analyse en continu. L'aérosol est prélevé dans le volume réservoir (fig. 4.4), son diamètre est déterminé par une analyse de la mobilité des particules possédant une charge électrique et en tenant compte de l'étalonnage de l'appareil. Nous mesurons ainsi un diamètre égal à  $0,68 \mu\text{m}$ . La concentration, déterminée à l'aide d'un CNC, est égale à  $23 \text{ p. cm}^{-3}$ .

Nous représentons sur la figure 4.8 le nombre de particules détectées pendant une durée de 20 s en fonction de la tension appliquée dans le SMEC.

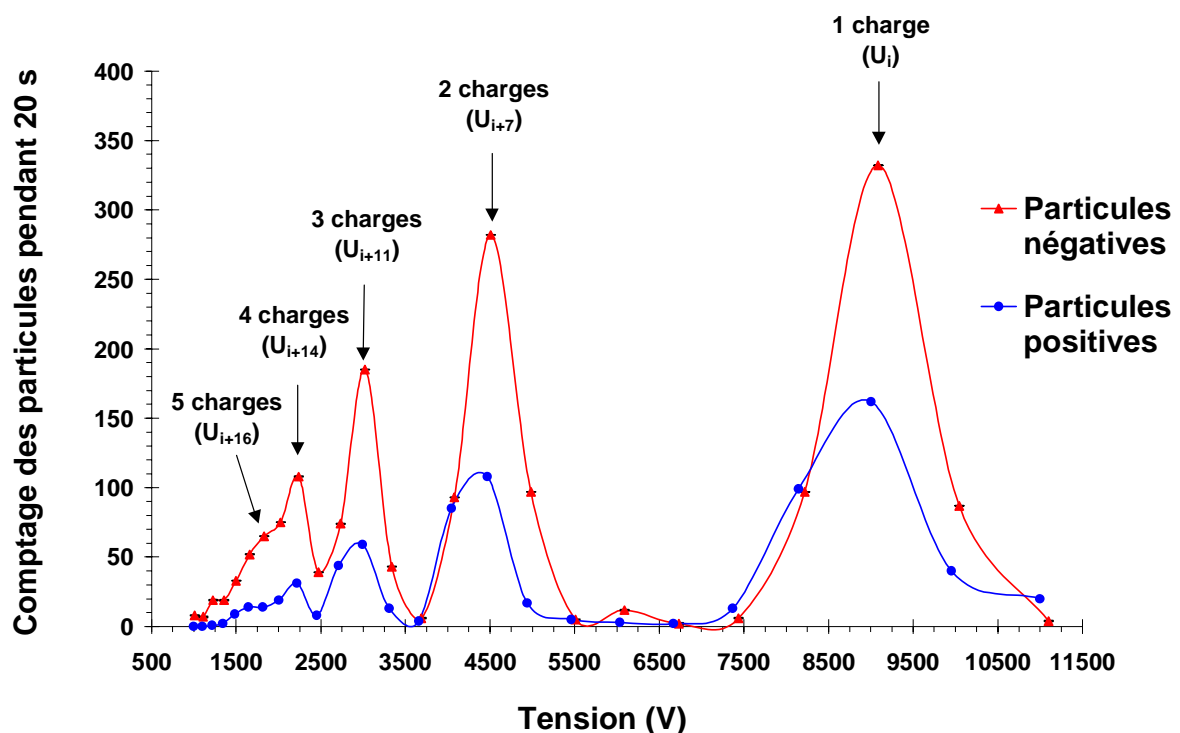


Figure 4.8 - Distribution en mobilités de l'aérosol simulant.

Nous remarquons sur la figure 4.8 que les distributions en mobilités des particules positives et négatives sont différentes, le comptage des particules négatives étant plus important que celui des positives. Nous pouvons en déduire que la distribution des charges électriques n'est pas symétrique et est décalée vers des valeurs négatives, ce qui est logique puisque nous avons mesuré précédemment un paramètre d'asymétrie égal à 0,80 (fig. 4.7).

- Détermination de la distribution des charges électriques

La méthode permettant de déterminer la distribution des charges électriques à partir de celles des mobilités est également plus complexe que la méthode présentée dans le chapitre 3. Dans ce cas, nous ne pouvons pas déduire les concentrations respectives des particules chargées à partir des maxima de chaque pic. En effet, même si la valeur de départ de la suite géométrique de tension est judicieusement choisie, les pics que nous mesurons ne coïncident pas parfaitement avec le maximum de la fonction de transfert du système. La fraction pénétrante est donc inférieure à 1, ce qui conduit à une sous-estimation des concentrations.

Pour s'affranchir de ce problème, nous raisonnons uniquement sur les comptages de particules. Soit  $N_{\pm 1}$ ,  $N_{\pm 2}$ ,  $N_{\pm 3}$ ,  $N_{\pm 4}$ , les comptages des particules positives ou négatives possédant 1, 2, 3 ou 4 charges. Si nous supposons que les fractions de particules portant plus de 4 charges sont négligeables, nous pouvons écrire :

$$N_t - N_0 = \sum_{i=1}^4 N_{\pm i} , \quad (4.7)$$

où  $N_t$  et  $N_0$  représentent respectivement les comptages calculés de la totalité des particules et de celles qui sont neutres.

Par ailleurs, nous déterminons aux cours de l'expérience la concentration totale de l'aérosol ( $C_t$ ) et la concentration des particules neutres ( $C_0$ ) en modifiant l'écoulement aérodynamique dans le SMEC, comme nous l'avons déjà exposé dans le chapitre 3. Nous en déduisons alors  $C_t/C_0$ , et il est évident que nous avons la relation :

$$\frac{C_0}{C_t} = \frac{N_0}{N_t} , \quad (4.8)$$

Nous calculons ainsi les valeurs de  $N_t$  et  $N_0$  en utilisant les relations 4.7 et 4.8. Nous pouvons ensuite déduire la distribution des charges électriques en effectuant les rapports  $N_{\pm i}/N_t$ . Par ailleurs, nous présentons dans l'annexe F les calculs nous permettant de déterminer les écarts types sur les fractions chargées.

Nous représentons sur la figure 4.9 la distribution des charges électriques ainsi obtenue pour l'aérosol simulant de diamètre égal à 0,68  $\mu\text{m}$ . Nous représentons également l'équilibre de Boltzmann et le modèle de Clement et Harrison (1992) calculé pour un paramètre d'asymétrie égal à  $X=0,80$ .

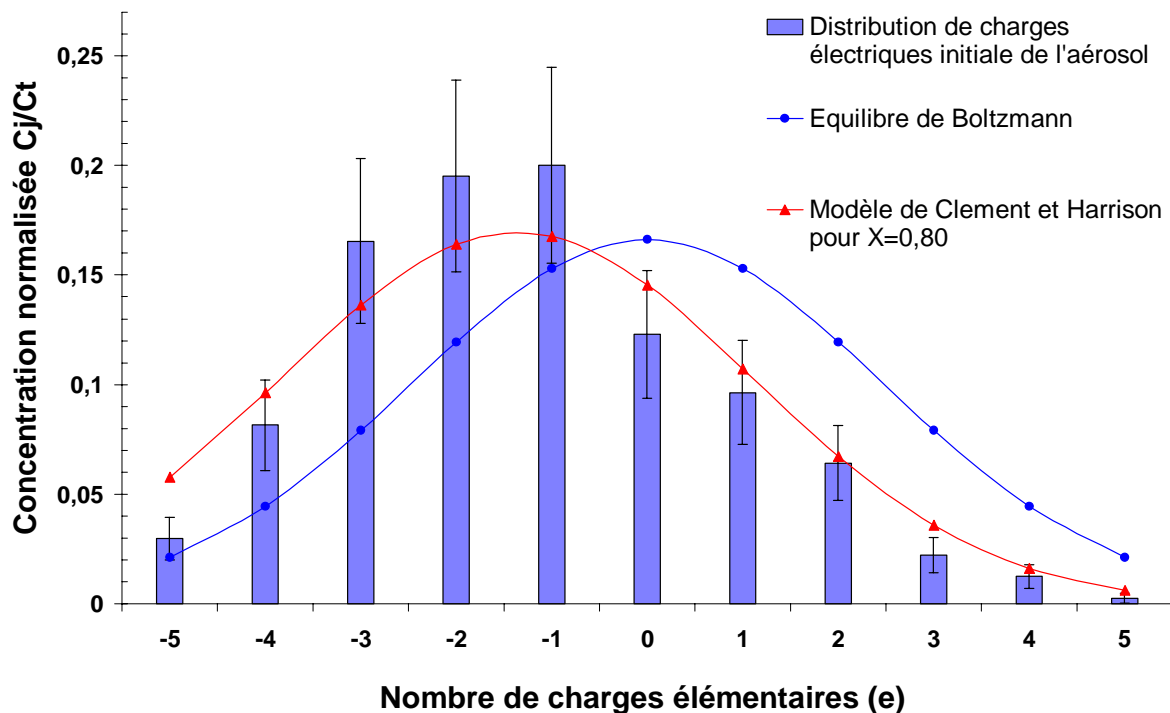


Figure 4.9 - Distribution initiale de charges électriques de l'aérosol simulant.

Nous constatons que la distribution des charges électriques est décalée vers des valeurs négatives. Toutefois, le modèle de Clement et Harrison surestime légèrement (algébriquement) nos résultats expérimentaux. En effet, la charge moyenne déterminée d'après notre distribution expérimentale est égale à  $\bar{J}=-1,21 e$ , tandis que la charge moyenne déterminée d'après le modèle théorique est  $\bar{J}=-1,13 e$ .

- Effet de la gravité sur la détermination de la concentration totale dans le SMEC

Rappelons que nous avons mesuré avec l'APS un diamètre aérodynamique de l'aérosol simulant égal à 1,07  $\mu\text{m}$ . De ce fait, sa vitesse de sédimentation n'est pas négligeable. Nous devons alors tenir compte de cet effet lors de la détermination de la concentration totale de

l'aérosol et de la concentration de particules neutres. En effet, ces mesures sont effectuées en échantillonnant l'aérosol à travers le SMEC avec un faible débit (0,3 l/min), le temps de résidence des particules est donc important et le dépôt par sédimentation devient sensible. Pour évaluer cet effet, nous devons considérer notre système comme une batterie de sédimentation (Boulaud *et al.*, 1983) ou un analyseur de mobilité dynamique d'ordre 0. Nous représentons dans l'annexe G, la fonction de transfert d'un tel système.

La probabilité d'extraction des particules (P) est définie en fonction du débit d'aérosol (Qa) et du temps de relaxation dynamique ( $\tau_d$ ) des particules (Renoux et Boulaud, 1998) par la relation :

$$P = \frac{1}{Qa} \cdot (Qa - 2\pi \cdot \tau_d \cdot \Delta\sigma_{\text{grav}}) , \quad (4.9)$$

où  $\Delta\sigma_{\text{grav}}$  représente la variation de la fonction de flux de champ de gravité entre l'entrée et la sortie de l'aérosol dans l'analyseur (Le Bronnec *et al.*, 1999).

Pour le SMEC, nous obtenons  $\Delta\sigma_{\text{grav}} = \frac{a^2}{2} \cdot g$ , où a représente la distance radiale entre l'entrée et la sortie de l'aérosol dans le SMEC (a=6,5 cm) et g l'accélération du champ de pesanteur.

Pour un diamètre aérodynamique de 1,07  $\mu\text{m}$  (fig 4.5), la vitesse limite de chute et le temps de relaxation des particules sont respectivement égaux à  $3,99 \times 10^{-3} \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  et  $4,07 \times 10^{-6} \text{ s}$ .

Lorsque nous déterminons la concentration totale de l'aérosol et celle des particules neutres, le débit dans le SMEC est égal au débit de prélèvement du CNC soit Qa=0,3 l/min, la probabilité d'extraction est alors égale à 0,89 (eq. 4.9), ce qui indique une perte de 11 % sur la concentration totale de l'aérosol.

Signalons que cet effet n'est pas influent sur la détermination du rapport  $C_0/C_t$ . En revanche, nous devons en tenir compte pour déterminer la concentration totale nécessaire pour la représentation du modèle théorique de la distribution des charges des aérosols radioactifs.

#### III.4. *L'échantillonnage de l'aérosol entre la génération et la mesure*

Comme nous l'avons déjà expliqué, notre dispositif expérimental comporte un volume d'échantillonnage qui assure d'une part, une fonction de réservoir, d'autre part, une fonction de vieillissement de l'aérosol. Ce volume permet de dérouler l'expérience en deux étapes : la génération de l'aérosol, puis le vieillissement et l'analyse. Pour bien maîtriser l'évolution de l'aérosol dans ce volume d'échantillonnage, nous avons effectué différentes validations de son fonctionnement dont le détail est présenté dans l'annexe H. Nous montrons ainsi que la concentration de l'aérosol évolue en fonction du taux de renouvellement dans le volume pendant l'analyse, mais aussi du fait de la sédimentation des particules.

Signalons que pour tenir compte de cette variation dans le calcul de la distribution des charges électriques, nous enregistrons, pour chaque point expérimental de la distribution en mobilités, l'heure de la mesure. Ainsi, en utilisant les relations 4 et 6 de l'annexe H, nous compensons la variation de la concentration en calculant le nombre de particules correspondant à une même heure de mesure. Nous choisissons l'heure de la mesure de la concentration totale de l'aérosol au début de l'expérience comme référence de temps.

### III.5. *Le confinement dynamique de l'installation*

Nous confignons notre dispositif expérimental dans une boîte à gants de classe 2, le taux de fuite horaire de cette enceinte doit donc être inférieur à  $10^{-2} \text{ h}^{-1}$ . Pour le vérifier, nous effectuons un test d'étanchéité par remontée de pression, suivant les recommandations du catalogue PMDS (Protection, Manipulation, Détection, Sécurité) sur les enceintes de confinement qui est édité par le C.E.A.

Nous présentons sur les figures 4.10, 4.11 et 4.12 des photos de notre installation.



Figure 4.10 -Vue générale de l'installation en boîte à gants.

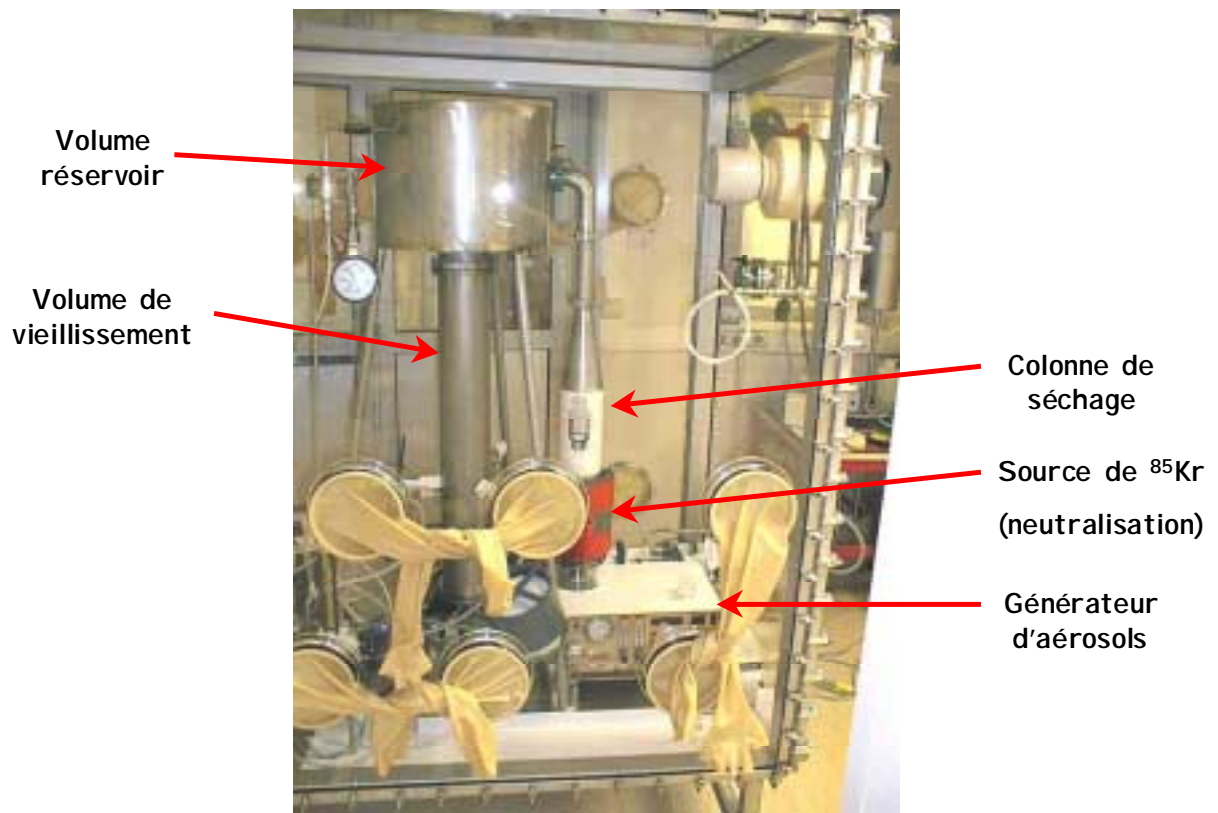


Figure 4.11 - Vue du générateur d'aérosol et du volume d'échantillonnage.

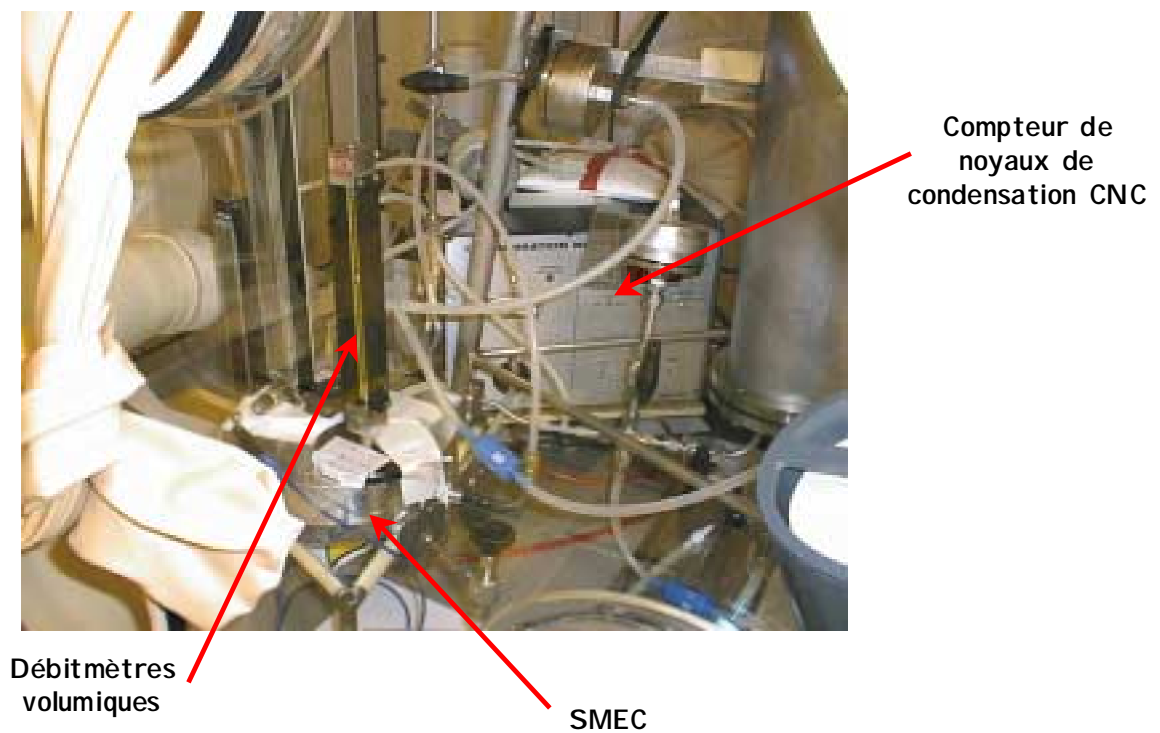


Figure 4.12 - Vue du système de mesure de la distribution des charges électriques.



## IV. Mesure de la distribution des charges électriques d'un aérosol radioactif contenant du $^{137}\text{Cs}$

### IV.1. Procédure expérimentale et détermination des paramètres de l'aérosol radioactif

- Procédure expérimentale

Le déroulement d'une expérience est le suivant :

- *Mise en service du dispositif expérimental.* Nous contrôlons le fonctionnement du générateur d'aérosols et effectuons une expérience avec l'aérosol simulant.
- *Préparation de la solution radioactive.* Cette étape s'effectue sous une sorbonne. Nous disposons d'une solution "mère" étalon de  $^{137}\text{Cs}$  dont la concentration en activité est  $0,815 \text{ MBq g}^{-1}$ . Notre solution est préparée en effectuant une dilution de la solution mère avec de l'eau désionisée. La concentration en activité de la solution est déterminée en pesant d'une part, la quantité de solution mère utilisée, d'autre part, la solution finale.
- *Génération de l'aérosol radioactif.* Cette étape permet de balayer notre volume d'échantillonnage et ainsi de le remplir avec l'aérosol radioactif. A la fin de l'opération, le générateur d'aérosols est arrêté.
- *Détermination du diamètre de l'aérosol.* Celui-ci est déterminé en prélevant l'aérosol dans le volume de vieillissement et en déterminant la mobilité des particules portant une charge élémentaire à partir de l'étalonnage du SMEC.
- *Détermination des distributions en mobilités positives et négatives des particules.* Ces distributions sont déterminées, soit dans le volume réservoir, soit dans le volume de vieillissement.
- *Arrêt du dispositif expérimental.* Cette étape comprend la purge aéraulique du volume d'échantillonnage, le rinçage du circuit hydraulique du générateur d'aérosol et l'évacuation des effluents radioactifs.

- Détermination des paramètres de l'aérosol radioactif

L'activité spécifique des particules est déterminée en fonction du volume des gouttelettes et de la concentration en activité de la solution radioactive. Pour cela, nous utilisons les relations 4.1 et 4.4.

Le nombre de paires d'ions produites est estimé en fonction de l'énergie du rayonnement bêta du  $^{137}\text{Cs}$  et de la géométrie de l'échantillonnage. Ainsi nous obtenons  $I \approx 5000$  p.i.  $\text{dès}^{-1}$  dans le volume réservoir et  $I \approx 100$  p.i.  $\text{dès}^{-1}$  dans le volume de vieillissement.

Nous avons vu que le diamètre de l'aérosol est déterminé à l'aide du SMEC (annexe C), nous calculons ensuite son diamètre aérodynamique à l'aide de la relation 4.5 pour déterminer les différents effets de la sédimentation.

Nous déterminons finalement la concentration de l'aérosol à l'aide du CNC. Rappelons que l'aérosol étant d'abord échantillonné à travers le SMEC, nous prenons donc en compte la perte par sédimentation en utilisant la relation 4.9. Par ailleurs, comme la concentration évolue pendant l'analyse, nous effectuons plusieurs mesures au cours de l'expérience et calculons une valeur moyenne.

#### IV.2. Résultats expérimentaux

Nous effectuons plusieurs expériences pour différentes activités spécifiques des particules. Pour chaque activité spécifique, nous déterminons la distribution des charges électriques dans le volume réservoir et dans le volume de vieillissement.

- Variation de la distribution des charges électriques de l'aérosol radioactif en fonction de l'intensité d'ionisation

Nous préparons une solution d'activité totale égale à 1,63 MBq et de volume égal à 5 ml. A partir de cette solution et en fonction des paramètres du générateur à orifice vibrant, nous produisons un aérosol ayant une activité spécifique égale à  $1,28 \times 10^{-2}$  Bq p. $^{-1}$ .

Nous déterminons le diamètre de l'aérosol par une première analyse de la mobilité des particules. Dans cette expérience, nous obtenons un diamètre des particules ( $d_p$ ) égal à  $0,82 \mu\text{m}$ . Le diamètre aérodynamique est estimé en utilisant la valeur  $\theta=2,5$  de la densité des particules déterminée expérimentalement pour l'aérosol simulant. Nous obtenons ainsi un diamètre aérodynamique de l'aérosol radioactif égal à  $1,31 \mu\text{m}$ .

Pour la mesure des distributions en mobilités nous utilisons le SMEC avec un débit d'air filtré égal à  $2,0 \text{ l/min}$  et un débit d'aérosol égal à  $0,2 \text{ l/min}$ . Compte tenu de la vitesse de l'écoulement dans la batterie de tubes pour un débit de prélèvement égal à  $0,2 \text{ l/min}$  et de la vitesse de sédimentation des particules, nous calculons un temps de vieillissement de l'aérosol égal à environ  $1050 \text{ s}$  (annexe H). Nous commençons donc l'analyse des distributions en mobilités dès que ce temps est écoulé à partir du début du prélèvement.

La concentration de l'aérosol est déterminée à partir de plusieurs mesures de la concentration totale pendant l'expérience. Nous calculons ainsi une concentration moyenne égale à  $19 \text{ p. cm}^{-3}$ .

Nous représentons sur la figure 4.13 la distribution expérimentale de charges électriques obtenue dans le volume de vieillissement. Nous représentons également la loi d'équilibre de Boltzmann ainsi que les modèles de Clement et Harrison (1992) pour l'aérosol radioactif et pour celui inactif.

La distribution théorique de l'aérosol radioactif est déterminée en utilisant les relations (1.71 et 1.74) avec les paramètres de l'aérosol déterminés précédemment. En revanche, comme nous ne disposons pas de mesure du paramètre d'asymétrie, nous prenons une valeur égale à  $0,80$  correspondant à celle déterminée expérimentalement lors de la génération de l'aérosol. La distribution de l'aérosol inactif est déterminée par la relation 1.45 en utilisant également un paramètre d'asymétrie égal à  $0,80$ .

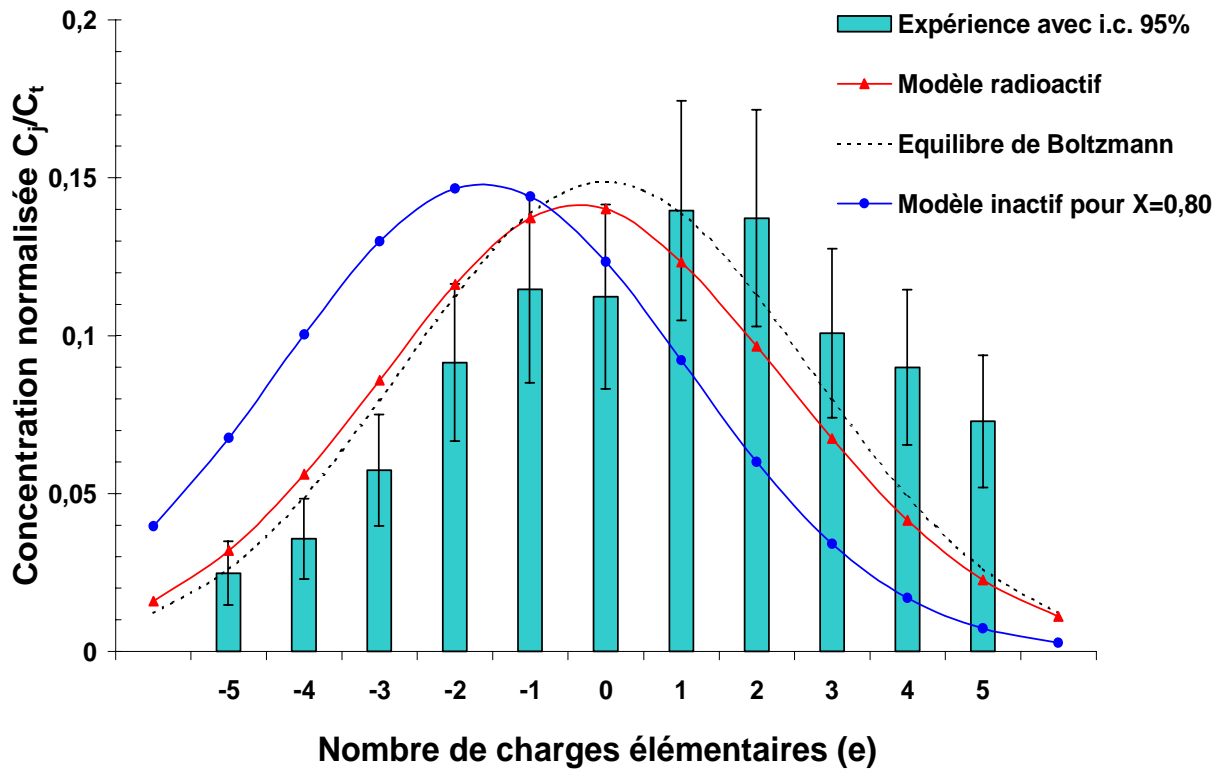


Figure 4.13 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre  $d_p=0,82$   $\mu\text{m}$ , d'activité spécifique  $\eta=1,28 \times 10^{-2}$   $\text{Bq p.}^{-1}$  avec  $I \approx 100$   $\text{p.i. d}\ddot{\text{e}}\text{s}^{-1}$ .

Nous remarquons que la distribution des charges électriques obtenue expérimentalement est décalée vers des valeurs positives. Cette distribution est notablement différente de celle représentée d'après le modèle de Clement et Harrison pour un aérosol non radioactif (courbe bleue). Nos résultats permettent donc de mettre en évidence un auto-chargement de l'aérosol radioactif.

Bien que le modèle de Clement et Harrison pour l'aérosol radioactif (courbe rouge) représente mieux nos données expérimentales que le modèle inactif, nous constatons toutefois, qu'il sous estime nettement l'état de charge de l'aérosol. En effet, nous calculons d'après notre distribution expérimentale une charge électrique moyenne  $J=+0,75$  e tandis que la charge moyenne théorique de l'aérosol radioactif est  $J=-0,31$  e. Par ailleurs, la charge moyenne théorique de l'aérosol non radioactif est  $J=-1,37$  e.

Signalons que pour cet aérosol, le temps caractéristique d'évolution de la charge électrique qui est déterminé par la relation 1.75, est égal à 89 s. Notre temps de vieillissement est donc environ 12 fois supérieur à ce temps.

Signalons par ailleurs, que le modèle de Clement et Harrison pour l'aérosol radioactif représenté sur la figure 4.13 est déterminé en supposant la concentration de l'aérosol constante. Or, nous avons vu qu'elle varie au cours de l'analyse. Pour estimer l'effet de cette variation sur la distribution des charges de l'aérosol, nous calculons à l'aide du modèle théorique chaque fraction de particules chargées en fonction de la concentration effective au moment de la mesure expérimentale. Pour cela, nous disposons de l'heure à laquelle est mesuré chaque point expérimental, et nous utilisons l'équation de variation exponentielle de la concentration que nous avons validée dans l'annexe H.

Nous représentons sur la figure 4.14 les distributions théoriques de charges de l'aérosol radioactif d'une part, lorsque la concentration est supposée constante et égale à la concentration moyenne, d'autre part en tenant compte de la variation de la concentration au cours de l'analyse.

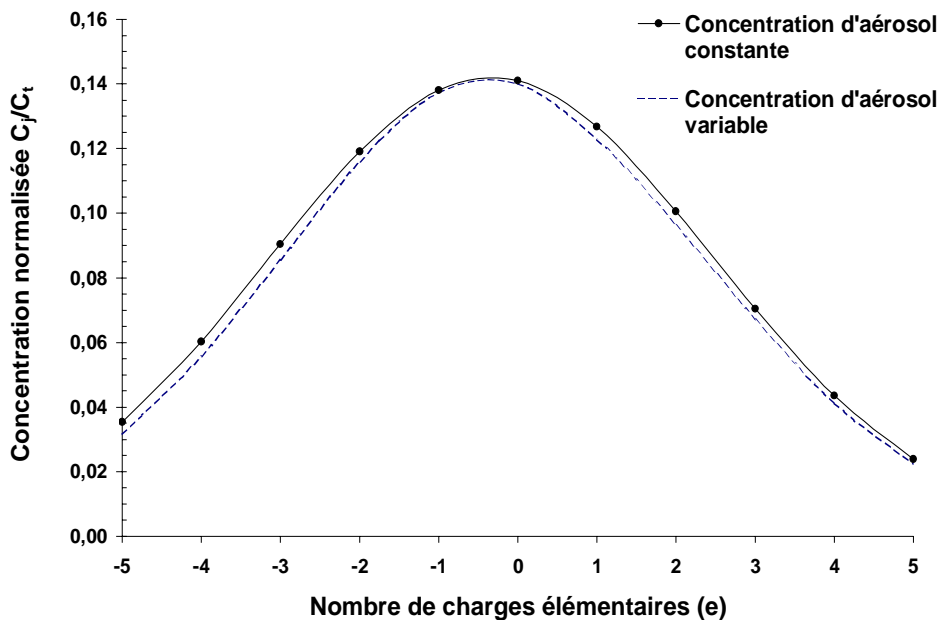


Figure 4.14 - Influence de la variation de la concentration sur la distribution des charges électriques de l'aérosol radioactif.

Nous remarquons que cette variation a un effet relativement faible sur la distribution des charges de l'aérosol. Lorsqu'on néglige cette variation, nous surestimons légèrement la concentration normalisée de l'aérosol. Toutefois, cet effet ne permet pas d'expliquer l'écart existant entre nos résultats expérimentaux représentés figure 4.13 et la distribution théorique.

Nous mesurons ensuite la distribution des charges électrique de l'aérosol dans le volume réservoir. Le diamètre de l'aérosol est toujours égal à  $0,82 \mu\text{m}$  et l'activité spécifique égale à  $1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq p.}^{-1}$ . En revanche, la concentration moyenne de l'aérosol est égale à  $14 \text{ p cm}^{-3}$ , et le nombre de paires d'ions créées par désintégration est d'environ  $5000 \text{ p.i. d\`es}^{-1}$ . Nous représentons sur la figure 4.15, la distribution des charges obtenue dans ces conditions. Nous représentons également les distributions de charges de Clement et Harrison pour l'aérosol d'une part inactif, d'autre part, radioactif. Nous considérons toujours que le paramètre d'asymétrie est fixe et égal à  $0,80$ . Par ailleurs, le temps caractéristique d'évolution de la distribution des charges électrique est égal à  $17 \text{ s}$ .

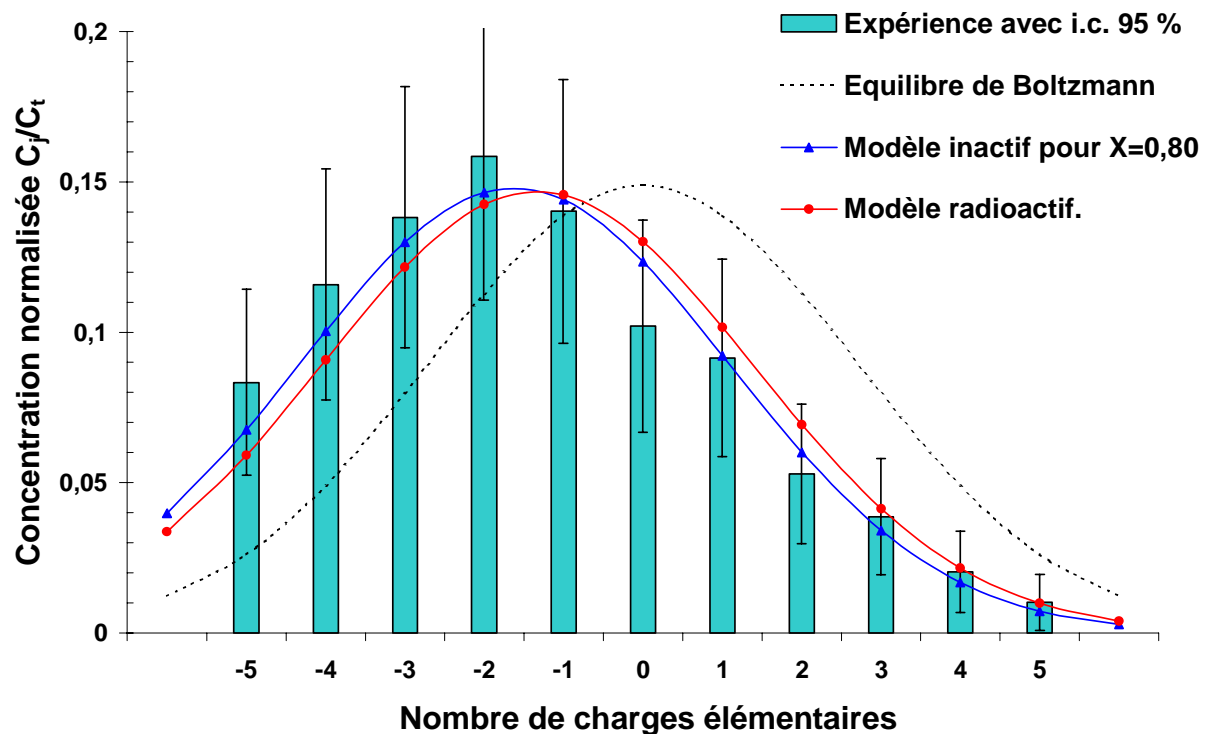


Figure 4.15 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre  $d_p=0,82 \mu\text{m}$ , d'activité spécifique  $\eta=1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq p.}^{-1}$  avec  $I \approx 5000 \text{ p.i. d\`es}^{-1}$ .

Nous constatons que la distribution des charges est décalée vers des valeurs négatives, et que nos résultats expérimentaux sont en accord avec la distribution théorique des charges électriques de l'aérosol radioactif. Cependant, comme nous le constatons d'après les modèles, l'auto-chargement de l'aérosol est très faible et nos résultats ne permettent pas de le mettre en évidence.

La comparaison de nos résultats dans le volume réservoir et dans le volume de vieillissement nous montre une variation importante de la distribution des charges électriques de l'aérosol radioactif. En effet, ils nous permettent de mettre clairement en évidence l'influence du nombre de paires d'ions produits par désintégration, et donc l'influence de l'intensité d'ionisation. Par ailleurs, ces résultats montrent également l'influence notable de l'échantillonnage sur la distribution des charges d'un aérosol radioactif.

Pour confirmer cet effet de la géométrie de l'échantillonnage sur l'établissement de la distribution des charges électriques, nous effectuons une autre série d'expériences pour une activité spécifique des particules plus faible.

Nous produisons cette fois un aérosol dont l'activité spécifique est égale à  $3,2 \times 10^{-3}$  Bq p.<sup>-1</sup>. Nous mesurons à l'aide du SMEC un diamètre égal à 1,05  $\mu\text{m}$ . Le diamètre aérodynamique des particules est alors égal à 1,66  $\mu\text{m}$  en supposant toujours une densité  $\theta=2,5$ . Au cours de l'analyse, nous mesurons une concentration moyenne de l'aérosol égale à 12 p cm<sup>-3</sup>.

Nous représentons sur la figure 4.16 la distribution des charges électriques pour cet aérosol radioactif dans le volume réservoir. Nous représentons également la distribution théorique pour l'aérosol radioactif ainsi que celle pour l'aérosol inactif. Ces distributions sont calculées pour un paramètre d'asymétrie égal à 0,80. Par ailleurs, le temps caractéristique d'évolution est ici égal à 35 s.

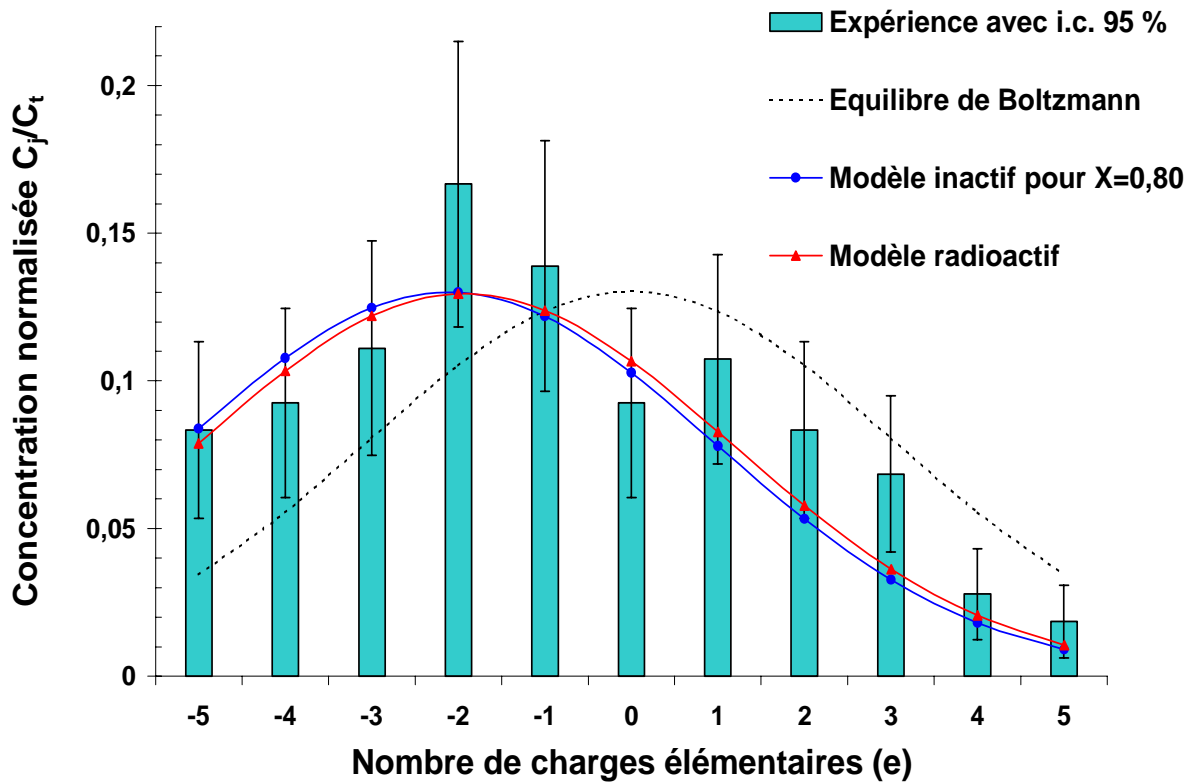


Figure 4.16 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre  $d_p=1,05 \mu\text{m}$ , d'activité spécifique  $\eta=3,2 \times 10^{-3} \text{ Bq p.}^{-1}$  avec  $I \approx 5000 \text{ p.i. d\AA}^{-1}$ .

Nous constatons, d'après les modèles théoriques, que l'auto-chargement de l'aérosol est très faible et que la distribution expérimentale des charges est décalée vers des valeurs négatives. Ce résultat est conforme à celui obtenu précédemment dans le volume réservoir pour l'aérosol d'activité spécifique supérieur. Néanmoins, nous remarquons que les modèles théoriques sous-estiment légèrement (algébriquement) nos résultats expérimentaux. En effet, la charge moyenne expérimentale est  $J=-0,91 \text{ e}$  tandis que la charge moyenne théorique du modèle radioactif est  $J=-1,26 \text{ e}$ .

Nous mesurons maintenant la distribution des charges électriques de l'aérosol radioactif dans le volume de vieillissement. L'activité spécifique des particules est toujours égale à  $3,2 \times 10^{-3} \text{ Bq p.}^{-1}$ . Nous mesurons cette fois un diamètre de l'aérosol égal à  $1,07 \mu\text{m}$  et une concentration moyenne de  $10 \text{ p. cm}^{-3}$ . Signalons que pour cet aérosol, le temps caractéristique d'évolution de la charge électrique dans le volume de vieillissement est égal à environ 240 s. Ce temps est relativement long, du fait de la faible activité spécifique de l'aérosol et du faible taux de production des ions.



Nous représentons sur la figure 4.17 la distribution des charges électriques obtenue pour cet aérosol dans le volume de vieillissement. Nous représentons également la distribution théorique pour l'aérosol radioactif ainsi que celle pour l'aérosol inactif.

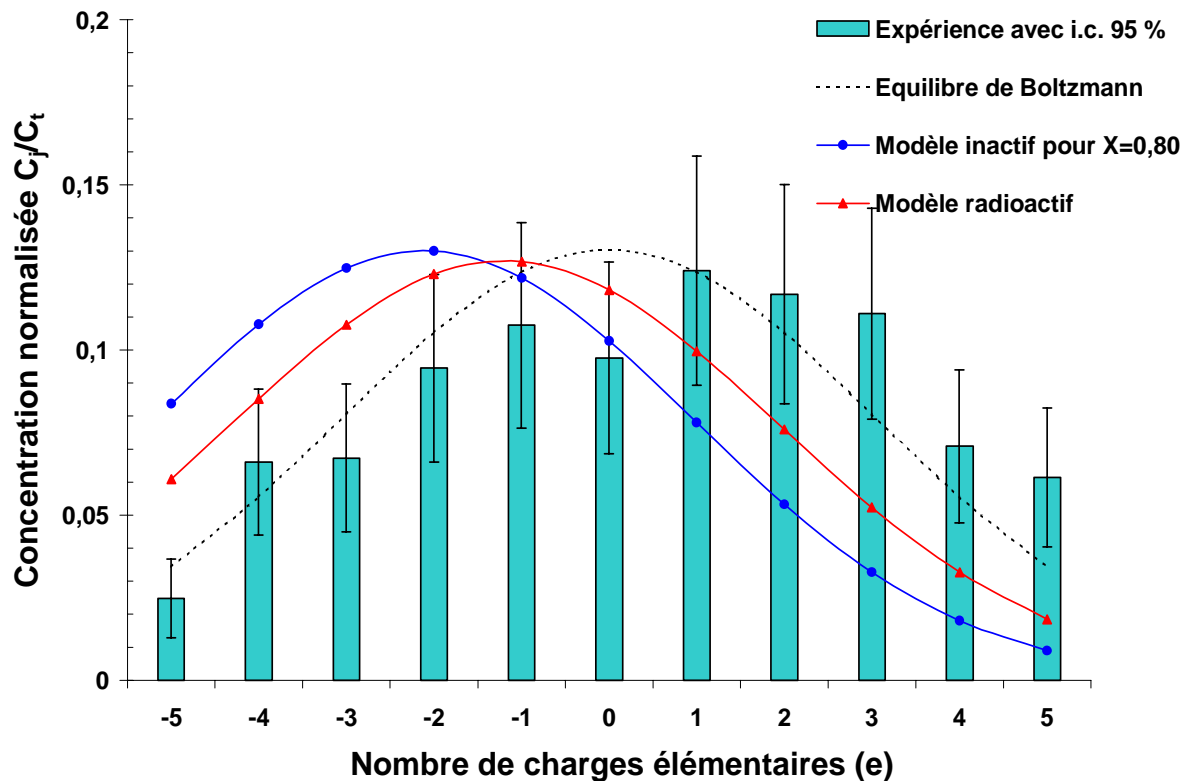


Figure 4.17 - Distribution des charges électriques d'un aérosol de diamètre  $d_p=1,07 \mu\text{m}$ , d'activité spécifique  $\eta=3,2 \times 10^{-3} \text{ Bq p.}^{-1}$  avec  $I \approx 100 \text{ p.i. d\AA}^{-1}$ .

Nous remarquons de façon analogue au résultat précédent, obtenu dans le volume de vieillissement (fig. 4.13), un décalage de la distribution des charges vers des valeurs positives. Par ailleurs, nous constatons que le modèle théorique de Clement et Harrison sous estime là encore nos résultats expérimentaux. Nous obtenons dans ce cas une charge moyenne expérimentale  $J=+0,39 \text{ e}$  tandis que la charge moyenne théorique de l'aérosol radioactif est  $J=-0,71 \text{ e}$ , et celle de l'aérosol inactif pour  $X=0,80$  est  $J=-1,23 \text{ e}$ .

En comparant les résultats obtenus pour cet aérosol, dans le volume réservoir et dans le volume de vieillissement, nous remarquons un effet important de l'intensité d'ionisation et de la géométrie de l'échantillonnage sur la distribution des charges électriques. Ces résultats confirment ceux obtenus pour un aérosol ayant une activité spécifique plus élevée. Par ailleurs, nos résultats expérimentaux montrent que le modèle théorique sous-estime nettement (algébriquement) l'état de

charge électrique de l'aérosol radioactif dans le volume de vieillissement. Nous expliquons cet écart par une surestimation des concentrations ioniques dans le milieu. En effet, pour déterminer ces concentrations, le modèle prend seulement en compte la recombinaison des ions, il ne tient pas compte des pertes par diffusion. Or, dans le volume de vieillissement, la surface des parois des tubes est importante et les pertes d'ions par diffusion sur les parois peuvent entraîner une diminution notable des concentrations ioniques.

- Variation de la distribution des charges électriques de l'aérosol radioactif en fonction de l'activité spécifique des particules

Nous avons montré précédemment l'influence de l'intensité d'ionisation et de la géométrie de l'échantillonnage. Mais nous remarquons également une variation de la distribution des charges en fonction de l'activité spécifique des particules. En effet, lorsque l'autochargement de l'aérosol est significatif, dans le volume de vieillissement, les distributions de charges obtenues sont fonction de l'activité spécifique des particules. Pour montrer cet effet, nous représentons sur la figure 4.18 les distributions de charges électriques dans le volume de vieillissement obtenues pour les aérosols ayant des activités spécifiques égales à  $3,2 \times 10^{-3} \text{ Bq p}^{-1}$  et  $1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq p}^{-1}$ .

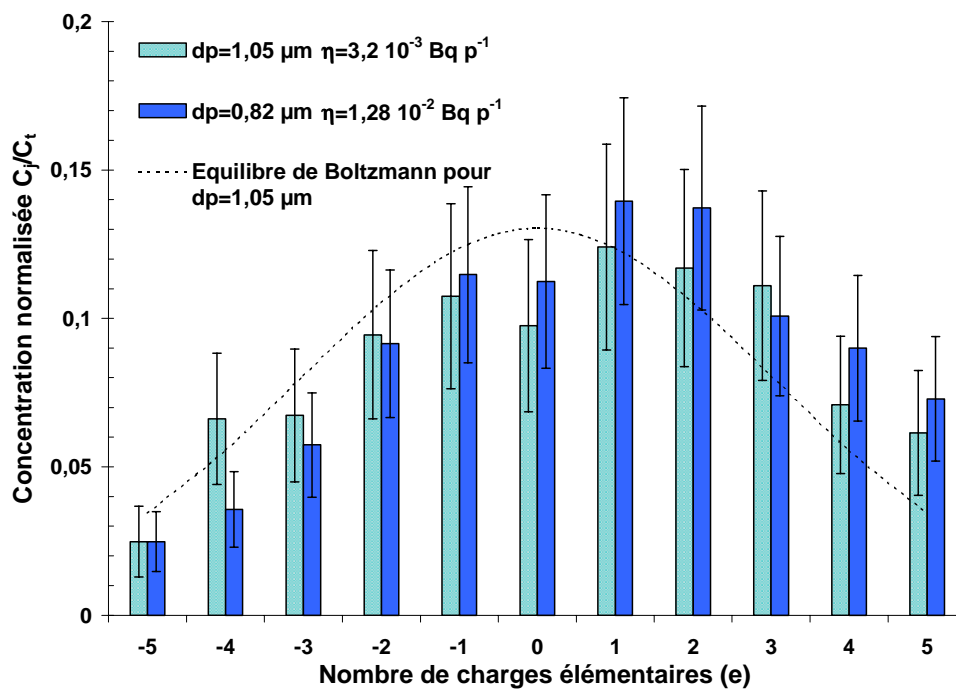


Figure 4.18 - Variation de la distribution des charges électriques en fonction de l'activité spécifique des particules.

Nous remarquons sur la figure 4.18 une légère variation de la distribution des charges de l'aérosol radioactif en fonction de l'activité spécifique des particules. La distribution obtenue pour une activité spécifique égale à  $1,28 \times 10^{-2}$  Bq p.<sup>-1</sup> est supérieure à celle obtenue pour  $3,2 \times 10^{-3}$  Bq p.<sup>-1</sup>. Cet écart est confirmé par les valeurs des charges moyennes respectives, +0,75 e et +0,39 e.

Signalons que cette variation peut également être due à la différence entre les diamètres des deux aérosols. En effet, lorsque l'aérosol est faiblement radioactif, le paramètre d'asymétrie est important pour déterminer la distribution des charges et dans ce cas, la charge moyenne de l'aérosol diminue algébriquement lorsque le diamètre augmente, nous l'avons montré dans le chapitre 3 (tableau 3.1).

Par ailleurs, bien que le modèle de Clement et Harrison sous estime nos résultats, nous remarquons un bon accord entre les variations théorique et expérimentale des distributions de charges obtenue pour des activités spécifiques différentes. En effet, la différence entre les charges moyennes obtenues pour  $1,28 \times 10^{-2}$  Bq p.<sup>-1</sup> et  $3,2 \times 10^{-3}$  Bq p.<sup>-1</sup> est égale à 0,36 e tandis que la différence calculée d'après les distributions théoriques est égale à 0,40 e.

## V. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié la charge électrique des aérosols radioactifs émetteurs bêta. Nos résultats expérimentaux nous permettent de mettre en évidence une variation importante de la charge électrique de l'aérosol radioactif en fonction du nombre de paires d'ions produites par désintégration, donc en fonction de l'intensité d'ionisation dans le milieu. En effet, la charge électrique moyenne de l'aérosol augmente notablement lorsque l'intensité d'ionisation diminue, même lorsque l'aérosol est faiblement radioactif. Nous obtenons cette variation en modifiant les conditions d'échantillonnage de l'aérosol, de ce fait, nous montrons l'influence de ce paramètre sur la détermination de la charge électrique d'un aérosol radioactif.

Par ailleurs, nos résultats montrent que le modèle théorique de Clement et Harrison (1992) sous-estime algébriquement l'état de charge électrique de l'aérosol lorsque l'intensité d'ionisation est réduite et qu'il évolue dans un assemblage de tube de faibles diamètres. Nous attribuons cet écart à une surestimation des concentrations ioniques, car nous négligeons les pertes d'ions par diffusion sur les parois du volume.

## CONCLUSION

Notre objectif était d'étudier expérimentalement la charge électrique des aérosols non radioactifs en milieu fortement ionisé ainsi que celle des aérosols radioactifs artificiels, ceci afin de qualifier les différents modèles théoriques existant dans la littérature.

Notre recherche bibliographique nous a permis d'exposer les différentes approches théoriques permettant de décrire l'état de charge électrique d'un aérosol en présence d'ions bipolaires. De plus, elle nous montre qu'il existe un manque de données expérimentales sur les propriétés électriques des aérosols en milieu fortement ionisé ainsi que sur celles des aérosols radioactifs.

Dans le cas des aérosols non radioactifs en milieu bipolaire, l'équilibre de Boltzmann est couramment employé pour décrire la répartition des charges électriques sur les particules, bien que plusieurs études montrent son inadéquation dans la majorité des situations. Toutefois, la connaissance de l'état de charge électrique des aérosols est essentielle dans des domaines d'activités très diversifiés. Par exemple dans les sciences du vivant, pour la fabrication de bio-molécules (Scalf *et al.*, 1999), et bien sûr en métrologie des aérosols (Houlaki, 1986).

Finalement, notre recherche bibliographique montre que cet état de charge électrique dépend des caractéristiques de l'aérosol (dimension, concentration), mais aussi de celles des petits ions positifs et négatifs présents dans le milieu (mobilités électriques, concentrations). Ces dernières sont représentées, notamment, par le paramètre d'asymétrie qui est défini par le rapport entre les conductibilités électriques des ions positifs et négatifs.

Dans le cas des aérosols radioactifs, il existe à l'heure actuelle un modèle théorique relativement complet, celui de Clement et Harrison (1992). Néanmoins, les résultats expérimentaux disponibles dans la littérature, et permettant de tester ce modèle étaient jusqu'à maintenant très peu nombreux. Notre étude bibliographique montre également que, dans certaines conditions, l'auto-chargement de tels aérosols est très important et peut notablement influencer leur comportement dans une enceinte.

Par ailleurs, le processus de charge électrique des aérosols radioactifs est complexe et les paramètres influents sont nombreux. Citons, par exemple, la nature et l'énergie du

rayonnement radioactif, l'activité spécifique et la concentration de l'aérosol. De plus, il nous est apparu que la mise en œuvre d'une étude expérimentale sur la charge électrique des aérosols radioactifs est complexe, du fait des différentes compétences qu'il est nécessaire de réunir et qui sont liées d'une part, à la métrologie des aérosols, d'autre part, au milieu nucléaire. C'est ce qui explique le nombre réduit des résultats expérimentaux disponibles.

Dans cette thèse, nous avons d'abord choisi de consacrer une part importante de notre travail de recherche à l'étude des petits ions présents dans un milieu fortement ionisé, car leurs caractéristiques déterminent l'état de charge électrique des aérosols.

Pour cela, nous avons réalisé un dispositif expérimental permettant de mesurer le paramètre d'asymétrie des ions. Nous étudions alors les propriétés des ions produits par des sources d'Américium 241 émettrices alpha. Nos résultats expérimentaux montrent une asymétrie importante entre les ions, la conductibilité électrique des ions négatifs étant d'environ 40 % supérieure à celle des ions positifs. De plus, nous mettons en évidence une différence entre les concentrations des ions positifs et négatifs, ce qui conduit à l'existence d'une charge d'espace et d'un champ électrique non négligeable dans notre volume d'échantillonnage.

Nous montrons ensuite expérimentalement que le rapport entre les concentrations des ions positifs et négatifs évolue significativement dans un conduit d'échantillonnage en aval d'une zone ionisée, ce qui bien évidemment, peut modifier l'état de charge électrique d'un aérosol.

Nous complétons notre étude par une approche numérique de ce problème à l'aide d'un code de calcul (TRIO EF). Bien que le modèle que nous résolvons numériquement soit incomplet, il nous permet toutefois de qualifier les effets de parois sur l'évolution des ions positifs et négatifs dans notre dispositif expérimental. Nous déduisons de ces résultats que le paramètre d'asymétrie augmente au voisinage d'une paroi.

Ensuite, nous poursuivons notre étude sur les ions en adaptant notre dispositif expérimental pour travailler dans une cellule d'irradiation équipée de sources radioactives de Cobalt 60. Nous pouvons ainsi étudier un milieu très fortement ionisé puisque nous atteignons des débits de doses de l'ordre de  $10^4$  Gy/h dans notre volume d'échantillonnage.

Nos résultats expérimentaux montrent que le paramètre d'asymétrie varie lorsque le milieu est fortement ionisé, il augmente avec la dose de rayonnement reçue par l'air. Nous montrons

que cette variation est due à l'évolution des mobilités électriques des petits ions positifs et négatifs. En effet, les ions positifs et négatifs obtenus pour des débits de doses élevés sont plus gros et la différence entre leurs mobilités électriques respectives est plus faible. Signalons que dans le cas d'un milieu faiblement ionisé le paramètre d'asymétrie augmente également, mais cette fois du fait des variations de concentrations des ions positifs et négatifs.

Tout ceci nous amène à réaliser un dispositif expérimental pour mesurer la distribution des charges électriques d'un aérosol, et nous utilisons ce dispositif pour déterminer l'état de charge électrique d'un aérosol monodispersé dans différents milieux contenant des ions bipolaires.

Nos résultats expérimentaux, obtenus en utilisant des sources d'Américium 241 pour produire les ions, montrent que la distribution des charges électriques de l'aérosol est significativement décalée vers des valeurs négatives, conformément aux prévisions des différents modèles théoriques (Gunn 1955, Clement et Harrison 1992) prenant en compte le paramètre d'asymétrie des ions. Nous montrons ainsi que l'équilibre de Boltzmann ne permet pas de représenter correctement la charge électrique de l'aérosol dans une telle situation.

Par la suite, nous montrons expérimentalement que la charge électrique de l'aérosol évolue significativement dans notre conduit en aval de la zone ionisée. Nos résultats démontrent que la charge moyenne de l'aérosol augmente (algébriquement) lorsqu'il s'éloigne de la zone d'ionisation, mais aussi lorsqu'il se trouve au voisinage de la paroi du conduit d'échantillonnage. Ces résultats sont qualitativement en accord avec nos résultats expérimentaux et numériques obtenus sur l'évolution des ions dans cette situation.

Par la suite, associant nos dispositifs de mesure des ions et de la charge électrique de l'aérosol, nous déterminons l'état électrique d'un aérosol en milieu très fortement ionisé par une irradiation gamma. Nos résultats expérimentaux mettent en évidence une variation de la distribution des charges électriques de l'aérosol en fonction de l'intensité d'ionisation du milieu et des propriétés des ions présents.

Nous montrons ainsi que la charge électrique moyenne de l'aérosol est négative, mais qu'elle augmente (algébriquement) avec l'intensité d'ionisation et donc avec la dose reçue par l'aérosol. Signalons qu'une variation analogue se produit lorsque le milieu est faiblement ionisé (Bricard *et al.*, 1965) comme dans l'atmosphère. Cependant, les raisons de ces variations sont totalement différentes. En effet, nous montrons qu'en milieu très fortement

ionisé, la variation de la charge électrique de l'aérosol résulte de l'évolution des mobilités électriques des petits ions positifs et négatifs, tandis qu'en milieu faiblement ionisé elle résulte de l'évolution du rapport entre les concentrations de ces ions. Ce qui nous permet de montrer que l'équation de Bricard *et al* (1965) n'est plus valable pour des paramètres de charge ( $Q/C_t^2$ ) supérieurs à  $10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ .

Après avoir étudié le cas des aérosols en milieu fortement ionisé, nous étudions les propriétés électriques des aérosols radioactifs artificiels. Pour cela, nous concevons et réalisons un dispositif expérimental original permettant de produire un aérosol radioactif étalon, de maîtriser les conditions de son évolution dans un volume d'échantillonnage et de mesurer la distribution de ses charges électriques.

A cette occasion, nous adaptons et développons des moyens métrologiques pour faire face aux contraintes expérimentales d'une telle étude. Nous réalisons également le confinement dynamique en boîte à gants de notre installation, puis nous procédons aux essais avec les aérosols radioactifs. Nous limitons notre étude aux cas des émetteurs bêta, car pour les émetteurs alpha il nous paraît incertain d'obtenir un auto-chargement de l'aérosol compte tenu de l'ensemble de nos contraintes expérimentales.

Ainsi, nos résultats expérimentaux sur la distribution des charges électriques des aérosols de  $^{137}\text{Cs}$  émetteurs bêta nous permettent de mettre en évidence un auto-chargement lié à sa radioactivité. Nous montrons, en particulier, que l'état de charge électrique des aérosols radioactifs est fortement dépendant des conditions de son évolution, notamment de la géométrie de l'échantillonnage. En effet, pour des aérosols radioactifs de différentes activités et dimensions, nous mesurons une augmentation (algébrique) notable de la charge électrique moyenne lorsque ceux-ci évoluent dans un espace restreint où l'intensité d'ionisation est limitée. Nous montrons également, que la polarité de la charge électrique change de signe en fonction des conditions d'évolution pour des aérosols faiblement radioactifs.

Par ailleurs, nous montrons que le modèle théorique stationnaire de Clement et Harrison (1992) décrivant la distribution des charges électriques sous-estime nos résultats expérimentaux. Nous expliquons cet écart par la diffusion des petits ions sur les parois de notre volume d'échantillonnage, ce phénomène n'étant pas pris en compte dans le modèle.

Finalement, l'ensemble de nos travaux nous permet de tirer les conclusions suivantes.

- Pour les aérosols non radioactifs en milieu bipolaire fortement ionisé, la distribution des charges électriques dépend étroitement des propriétés des ions présents et notamment du paramètre d'asymétrie. Elle est généralement différente de celle décrite par l'équilibre de Boltzmann. Le modèle de Clement et Harrison (1992) prenant en compte le paramètre d'asymétrie permet de décrire assez bien cette distribution, bien qu'il surestime (algébriquement) parfois nos résultats expérimentaux.
- La charge électrique de l'aérosol varie lorsqu'il s'éloigne de la zone d'ionisation, ou bien lorsqu'il est au voisinage d'une paroi. Elle varie également dans la zone d'ionisation lorsque le milieu est fortement irradié.
- Pour les aérosols radioactifs, la distribution des charges électriques est déterminée par les paramètres de l'aérosol, mais aussi par les conditions de son évolution.
- L'auto-chargement de ces aérosols est notable lorsque l'intensité d'ionisation est réduite.
- La polarité des aérosols faiblement radioactifs change de signe lorsqu'ils évoluent d'un milieu "infini" vers un milieu de géométrie réduite.

Les perspectives de notre travail devraient porter sur l'étude des mécanismes d'évolution des ions, ainsi que sur l'étude des propriétés électriques des aérosols non radioactifs fortement concentrés, dans un milieu très fortement ionisé. Il serait également intéressant d'étudier ces propriétés en dehors des conditions standard de pression et de température.

Par ailleurs, étant donnée l'importance des effets de paroi sur la charge électrique de l'aérosol, il serait intéressant de poursuivre l'utilisation du calcul numérique couplé avec les modèles théoriques donnant la charge électrique de l'aérosol.

Enfin, pour les aérosols radioactifs il serait nécessaire d'étendre le modèle de Clement et Harrison (1992) afin de tenir compte de la diffusion des ions sur les parois.

Par ailleurs, d'autres expériences doivent être conduites avec des aérosols émetteurs bêta de courtes périodes afin d'étudier avec précision la cinétique du processus d'auto-chargement. Etant donné que ce modèle sous-estime notablement l'état de charge électrique de l'aérosol dans notre système, il faudrait pouvoir étudier l'auto-chargement des aérosols émetteurs alpha avec des activités spécifiques adéquates.



## ANNEXE A : DISPOSITIFS DE PRODUCTION D'AEROSOLS MONODISPERSES

Pour produire un aérosol monodispersé dont la charge électrique est uniforme, nous pulvérisons une solution contenant des sphères de latex. L'aérosol obtenu est ensuite "neutralisé" à l'aide d'une source radioactive de  $^{85}\text{Kr}$ , puis introduit dans un analyseur différentiel de mobilité électrique. Cette dernière étape permet de sélectionner uniquement les sphères de latex portant une seule charge électrique. Nous produisons ainsi des aérosols de dimensions comprises entre 0,1 et 1  $\mu\text{m}$  pour des concentrations allant jusqu'à  $10^4 \text{ p. cm}^{-3}$  et avec des débits compris entre 0,2 et 0,6 l/min. Nous représentons sur la figure A1 ce dispositif expérimental.

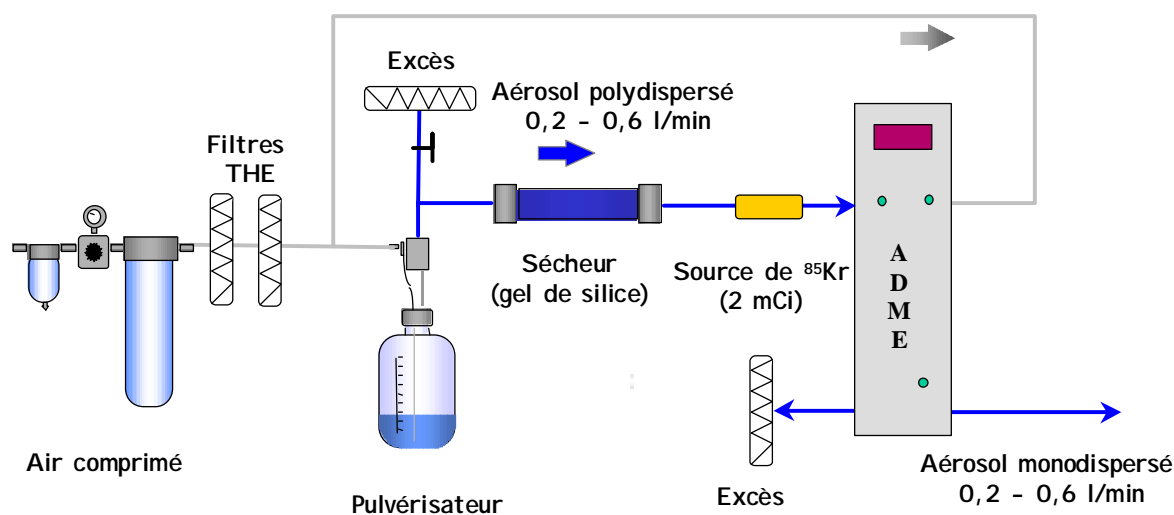


Figure A1 : Dispositif de production d'aérosols monodispersés utilisant un pulvérisateur et un classificateur électrostatique.

Nous utilisons également un pulvérisateur avec une batterie de diffusion pour produire un aérosol de sphères de latex. La batterie de diffusion nous permet d'éliminer les impuretés ultra fines de l'aérosol, mais il subsiste toujours des agrégats de plusieurs sphères. Toutefois, la concentration de ces agrégats est négligeable si la solution contenant les sphères de latex n'est pas trop concentrée (Billard *et al.* 1970). Nous neutralisons l'aérosol à l'entrée de la

batterie de diffusion pour réduire les effets électrostatiques sur la collection des impuretés dans la batterie, ce qui nous permet également obtenir un état de charge bien caractérisé pour l'aérosol de sphères de latex. Nous produisons, grâce à ce système, des aérosols de dimensions comprises entre 0,2 et 1  $\mu\text{m}$  pour des concentrations allant jusqu'à  $10^4$  p.  $\text{cm}^{-3}$  et avec des débits compris entre 1 et 2 l/min. Nous représentons sur la figure A2 notre dispositif expérimental.

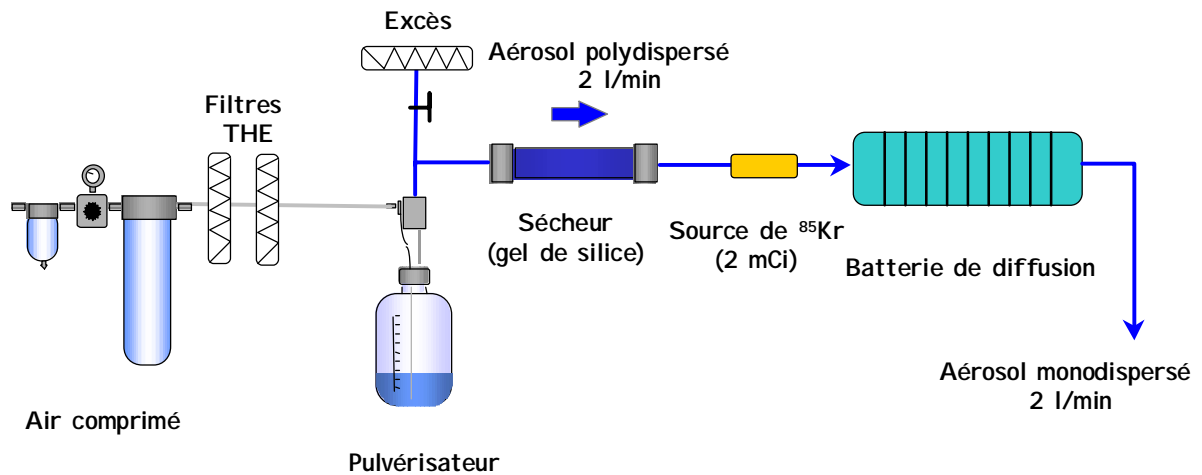


Figure A2 : Dispositif de production d'aérosols monodispersés utilisant un pulvérisateur et une batterie de diffusion.

## ANNEXE B : COMPARAISON DES SYSTEMES DE MESURE DE LA DISTRIBUTION DES CHARGES ELECTRIQUES UTILISANT UN SMEC D'ORDRE 1 OU 2

Nous comparons les distributions de charges électriques mesurées en utilisant, soit le SMEC d'ordre 1, soit le SMEC d'ordre 2, les aérosols étant préalablement neutralisés à l'aide d'une source radioactive de 2 mCi de  $^{85}\text{Kr}$ . Les conditions expérimentales sont identiques pour les deux analyseurs, c'est à dire : mêmes concentration d'aérosols, mêmes débits à travers le neutraliseur, et mêmes débits dans les analyseurs. Nous représentons sur la figure B1 les distributions des charges électriques obtenues pour un aérosol de diamètre égal à  $0,204\ \mu\text{m}$  et de concentration égale à  $1050\ \text{p cm}^{-3}$ .

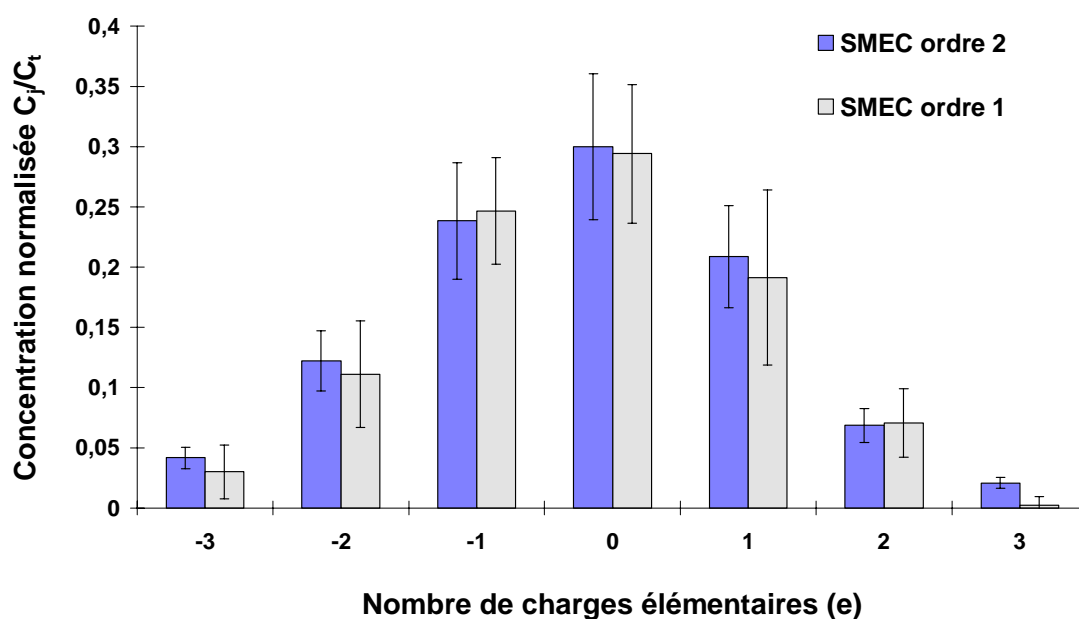


Figure B1 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de diamètre égal à  $0,204\ \mu\text{m}$ .

On constate un bon accord entre les deux mesures. La charge moyenne obtenue avec le SMEC d'ordre 1 est égale à  $-0,23\ e$ , et celle obtenue avec le SMEC différentiel est égale à  $-0,20\ e$ .

Nous représentons sur la figure B2 les distributions de charges obtenues pour un diamètre de  $0,497\ \mu\text{m}$  et de concentration égale à  $500\ \text{p cm}^{-3}$ .

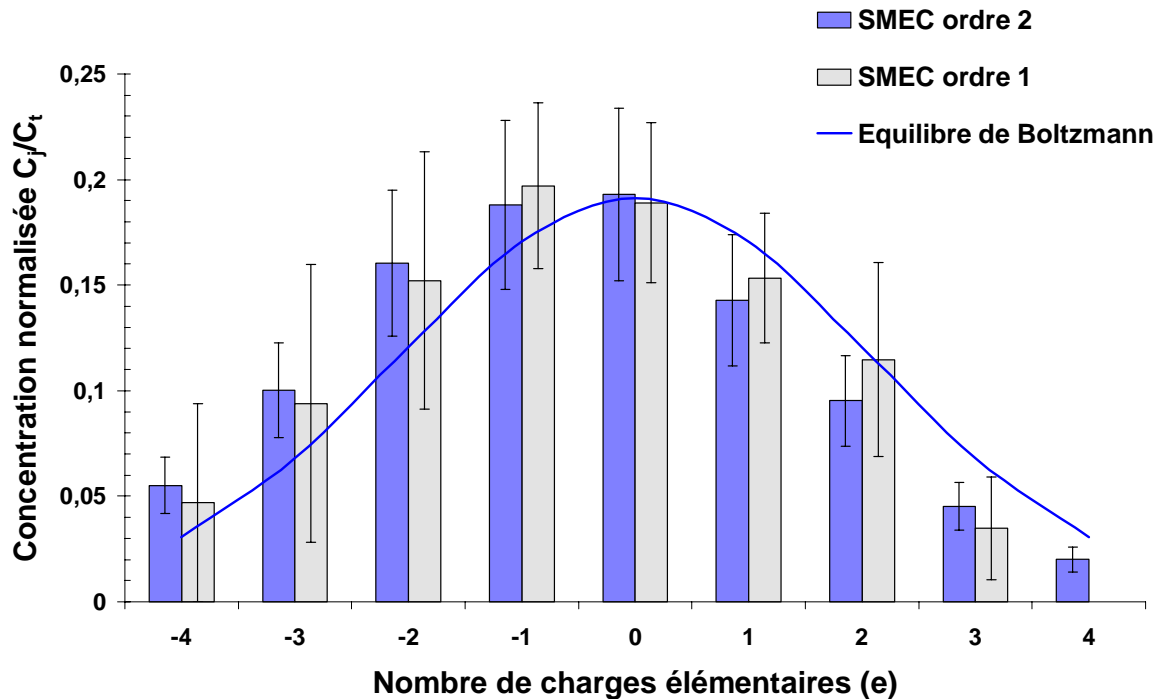


Figure B2 - Distribution des charges électriques pour un aérosol de diamètre égal à 0,497  $\mu\text{m}$ .

Nous remarquons là encore un bon accord entre les deux mesures. Toutefois, le SMEC différentiel permet de mieux distinguer les particules ayant plus de 3 charges électriques, et nous remarquons que les incertitudes obtenues avec le SMEC d'ordre 1 sont plus importantes. Dans ce cas, pour comparer les charges moyennes, nous prenons en compte seulement les particules portant jusqu'à 3 charges positives ou négatives. Nous obtenons  $J = -0,30$  e avec le SMEC d'ordre 1 et  $-0,37$  avec le SMEC différentiel.

## ANNEXE C : ETALONNAGE DU SMEC DIFFERENTIEL POUR LA DETERMINATION DU DIAMETRE D'UN AEROSOL MONODISPERSE

Pour déterminer le diamètre de l'aérosol produit par le générateur à orifice vibrant, il est nécessaire de déterminer avec précision sa mobilité. Pour cela, nous devons bien connaître les paramètres géométriques de l'analyseur et contrôler le débit d'air filtré. Le SMEC dont nous disposons étant un des premiers prototypes, nous ne pouvons pas contrôler de façon certaine la distance entre les électrodes, qui est un paramètre important pour déterminer la mobilité des particules sélectionnées. Par ailleurs, notre méthode rapide de balayage du spectre de mobilité de l'aérosol ne permet pas de déterminer avec suffisamment de précision la mobilité des particules. En conséquence, nous ne pouvons pas utiliser directement la fonction de transfert de l'appareil pour obtenir la mobilité des particules. Nous devons alors réaliser un étalonnage du SMEC dans nos conditions opératoires. Pour cela, nous fixons les paramètres du balayage du spectre des mobilités de l'aérosol et les débits d'aérosol et d'air filtré dans l'appareil. Nous utilisons des aérosols étalons de sphères de latex de diamètres compris entre 0,204  $\mu\text{m}$  et 1,24  $\mu\text{m}$  pour effectuer l'étalonnage. Nous représentons sur la figure C1 le diamètre de l'aérosol en fonction de la tension de sélection des particules dans le SMEC. Nos mesures sont effectuées avec un débit d'aérosol de 0,3 l/min et un débit d'air filtré de 3 l/min.

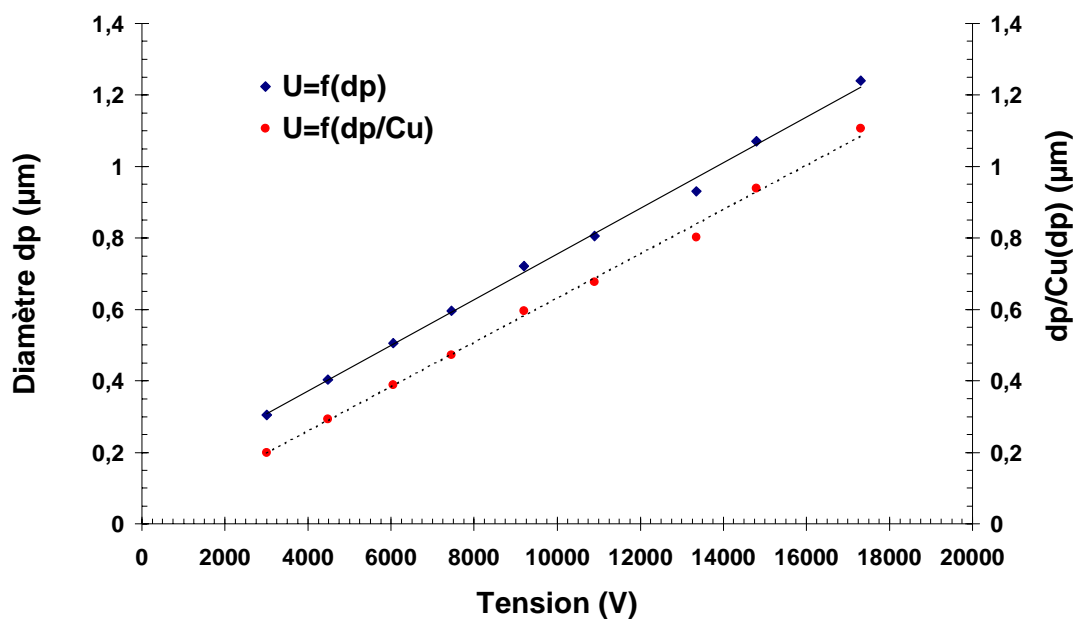


Figure C1 - Etalonnage du SMEC pour la détermination du diamètre des particules

Signalons que pour les particules de diamètre supérieur à  $0,72 \mu\text{m}$ , la tension de sélection des particules portant une seule charge est plus élevée que la tension de claquage du condensateur constitué par les électrodes du SMEC. Dans ce cas, nous déterminons alors la tension de sélection des particules portant deux charges élémentaires et nous représentons le double de cette tension sur la figure C1.

Nous représentons également, sur la figure C1, le rapport entre le diamètre et le coefficient de Cunningham des particules en fonction de la tension de sélection. Nous remarquons que les données expérimentales sont bien représentées par une droite, ce qui confirme que la mobilité électrique est proportionnelle à ce rapport (eq. 1.2). Nous constatons également que nos données représentant le diamètre en fonction de la tension sont bien représentées par une droite. Nous pouvons en conclure que dans cette gamme de dimensions, le coefficient de Cunningham peut être décrit par une fonction linéaire du diamètre des particules.

## ANNEXE D : MESURE DE LA DENSITE DES PARTICULES

Pour mesurer la densité des particules, nous disposons de deux méthodes distinctes, la première repose sur l'effet de gravité dans les analyseurs de mobilité électrique, la seconde sur la mesure du diamètre aérodynamique.

Les travaux de Le Bronnec (1998) montrent que la force de pesanteur peut jouer un rôle non négligeable sur la sélection des particules dans les SMEC. En effet, suivant le sens d'utilisation de l'appareil, la force électrique et la force de pesanteur s'additionnent ou bien se retranchent. Nous obtenons alors deux tensions ( $U_1$  et  $U_2$ ) distinctes pour la sélection des particules ayant la même mobilité électrique. Dans ce cas, l'écart entre ces tensions est relié à la masse ( $m$ ) des particules par la relation :

$$\Delta U = \frac{U_2 - U_1}{2} = \frac{m \cdot g \cdot h}{n \cdot e},$$

où  $g$  représente l'accélération du champ de pesanteur,  $h$  la distance entre les électrodes du SMEC,  $n$  le nombre de charges électriques des particules et  $e$  la charge élémentaire.

La tension moyenne  $\bar{U} = (U_1 + U_2)/2$  permet d'obtenir classiquement la mobilité des particules et donc leur diamètre. A partir de ces deux valeurs, nous pouvons ainsi calculer la densité des particules.

Nous remarquons qu'il est nécessaire de connaître la distance entre les électrodes ( $h$ ) pour déterminer la masse des particules. Nous calculons cette distance en mesurant les cotes de l'appareil, nous obtenons ainsi  $h = 3,88 \times 10^{-3}$  m.

Pour effectuer les mesures, nous avons utilisé un SMEC d'ordre 1 avec un débit total égal à 1,0 l/min et un débit d'aérosol de 0,2 l/min. L'aérosol simulant est produit par le générateur à orifice vibrant puis il est neutralisé à l'aide de la source de  $^{85}\text{Kr}$ . Sa concentration est d'environ  $35 \text{ p cm}^{-3}$ . Nous déterminons ensuite la distribution cumulée en mobilités avec le SMEC à "l'endroit", puis à "l'envers", et nous étudions spécifiquement le cumul entre les particules neutres et celles portant une seule charge électrique.

Nous présentons sur la figure D1 la concentration en fonction de la tension du SMEC. Nous normalisons la concentration mesurée par rapport à celle des particules neutres, mais également par rapport au cumul des particules neutres et de celles portant une charge électrique. Nous représentons donc sur la figure D1 le rapport  $C - C_0 / C_0 + C_1$  en fonction de la tension.

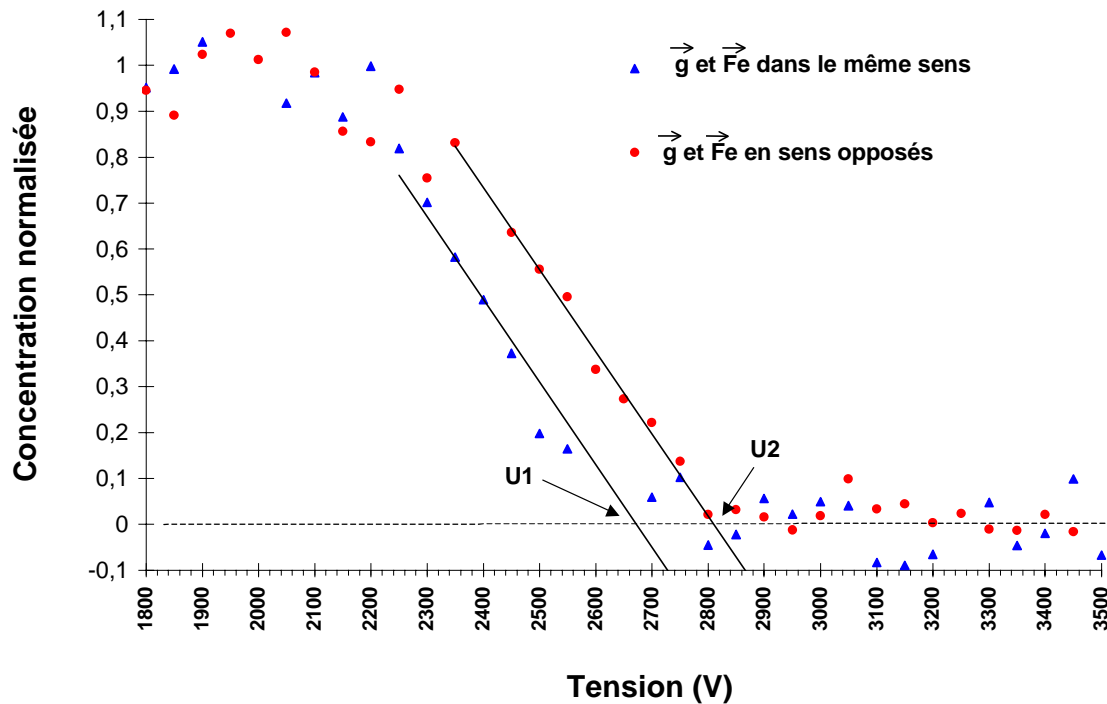


Figure D1 - Effet de la gravité dans le SMEC d'ordre 1 pour l'aérosol simulant.

Nous remarquons sur la figure D1, un effet notable de la gravité sur la sélection des particules. A partir de cette figure, nous obtenons  $\Delta U = 70 \text{ V}$  et  $\bar{U} = 2740 \text{ V}$ . Nous calculons ainsi un diamètre de particule  $dp = 0,65 \mu\text{m}$  et une densité  $\theta = 2,05$ .

Par ailleurs, le diamètre réel des particules et leur diamètre aérodynamique sont reliés par la relation :

$$da = \sqrt{\frac{Cu(dp)}{Cu(da)}} \cdot \sqrt{\theta} \cdot dp, \quad (2)$$

où  $Cu(dp)$  et  $Cu(da)$  représentent les coefficients de corrections de Cunningham.



Pour obtenir la densité des particules par une seconde méthode, il suffit donc de mesurer le diamètre aérodynamique. Nous déterminons celui-ci avec l'APS, et nous obtenons  $d_a=1,04 \mu\text{m}$ . En utilisant une méthode itérative, nous déterminons la densité des particules à partir du diamètre réel et du diamètre aérodynamique en utilisant la relation 2. Nous obtenons ainsi  $\theta=2,50$ .

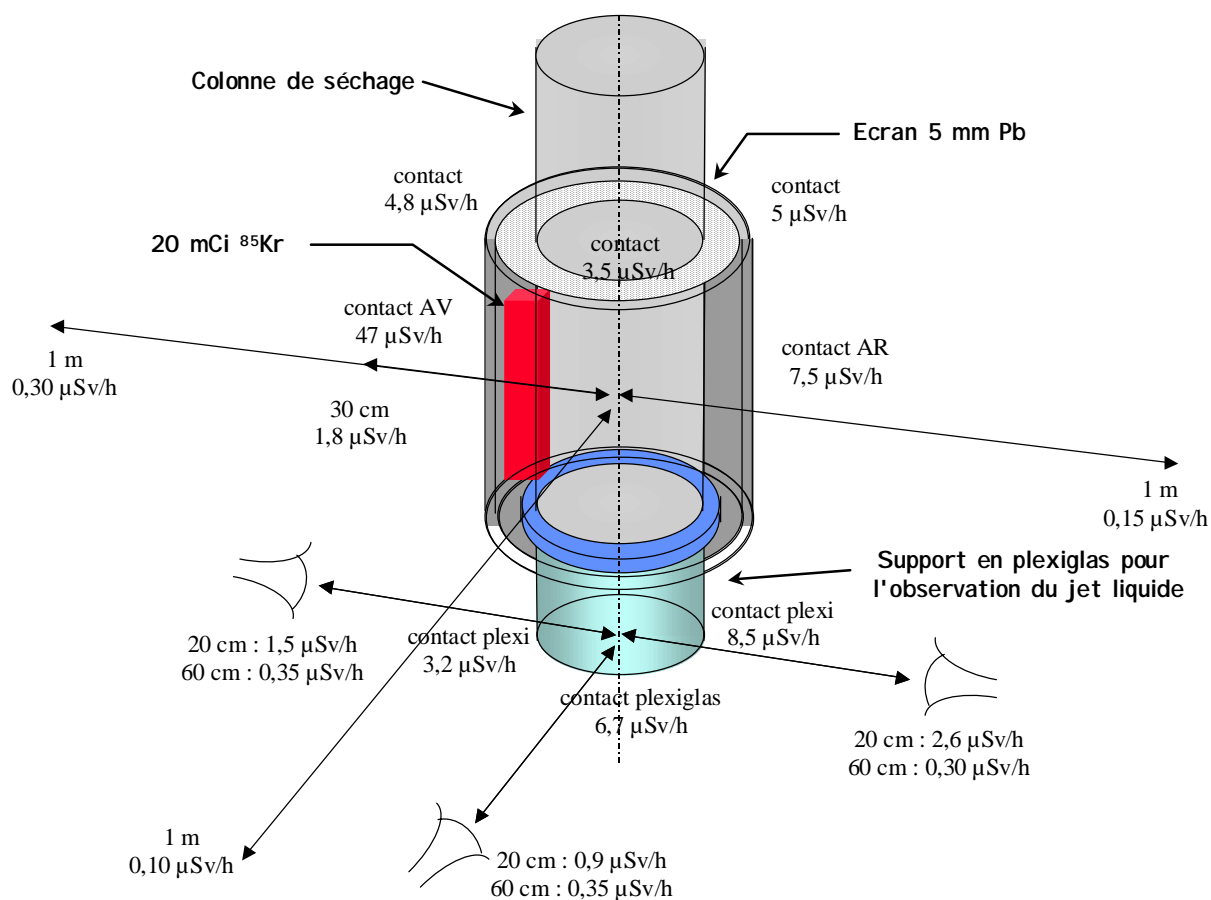
Bien que les densités obtenues par les deux méthodes soit du même ordre de grandeur, nous constatons, toutefois, un écart relatif d'environ 20 % entre les deux résultats. Nous attribuons cet écart à une incertitude importante sur la distance entre les électrodes du SMEC. En effet nous calculons qu'une variation de 5/10 de mm de cette distance permet de compenser l'écart entre les mesures. Par ailleurs, le SMEC d'ordre 1 que nous utilisons est, nous l'avons dit, un des premiers prototypes de l'appareil et son électrode de masse n'est pas parfaitement rigide. De ce fait, nous supposons qu'une variation de la distance entre les électrode peut se produire lorsque nous manipulons l'appareil en le mettant à "l'envers" pour la seconde mesure.

En conséquence nous estimons que la valeur de la densité obtenue à partir des diamètres réel et aérodynamique soit  $\theta=2,50$  est plus représentative que celle obtenue uniquement par l'effet de gravité dans le SMEC.

## ANNEXE E : DOSIMETRIE DE LA SOURCE DE $^{85}\text{Kr}$ DU GENERATEUR A ORIFICE VIBRANT

La source radioactive que nous utilisons pour neutraliser l'aérosol produit par le générateur à orifice vibrant à une activité égale à 20 mCi. Le rayonnement bêta de cette source est arrêté par les parois de la colonne de séchage qui sert également de support. En revanche, il subsiste un rayonnement X et un rayonnement de freinage. Pour atténuer ces rayonnements, nous plaçons un écran de plomb de 5 mm d'épaisseur autour de la source.

Nous déterminons ensuite le débit de dose autour de la source à l'aide d'un dosimètre. Cette étude permet de contrôler l'exposition de l'opérateur lors de la manipulation du générateur, notamment au niveau de l'œil qui se trouve à proximité pour contrôler le bon fonctionnement du jet liquide. Nous représentons sur la figure E1 un schéma de la source et de son support ainsi que les valeurs du débit de dose mesuré en plusieurs points.



**Figure E1** - Mesure de débits de doses autour de la source de  $^{85}\text{Kr}$ .

## ANNEXE F : CALCUL DES INCERTITUDES SUR LES DISTRIBUTIONS DES CHARGES ELECTRIQUES

Pour déterminer la distribution des charges électrique nous utilisons les comptages de particules chargées ( $N_j$ ) ainsi que les mesures de la concentration totale ( $C_t$ ) et celle des particules neutres ( $C_0$ ). Nous calculons alors les rapports  $N_j/N_t$  ce qui équivaut aux fractions  $C_j/C_t$ .

Nous devons alors déterminer l'écart type  $\sigma_{f_j}$  sur le paramètre  $f_j = N_j/N_t$  ; en utilisant la loi de propagation des erreurs nous obtenons la relation :

$$\sigma_{f_j}^2 = \left(\frac{1}{N_t}\right)^2 \cdot \sigma_{N_j}^2 + \left(\frac{N_j}{N_t^2}\right)^2 \cdot \sigma_{N_t}^2 \quad (1)$$

Les écarts types sur les comptages  $N_j$  étant déterminés par la relation  $\sigma_{N_j} = \sqrt{N_j}$ , nous devons maintenant calculer l'écart type  $\sigma_{N_t}$  sur  $N_t$ . Nous avons vu que  $N_t$  s'exprime en fonction de la somme des comptages des particules chargées et du rapport entre les concentrations des particules neutres et totale de l'aérosol. Nous obtenons ainsi la relation :

$$N_t = \frac{\beta}{1-\alpha}, \text{ avec } \beta = \sum_{j \neq 0} N_j \text{ et } \alpha = C_0/C_t \quad (2)$$

L'écart type sur le comptage virtuel  $N_t$  s'exprime en fonction des écart types sur  $\alpha$  et  $\beta$  par la relation :

$$\sigma_{N_t}^2 = \left(\frac{1}{1-\alpha}\right)^2 \cdot \sigma_{\alpha}^2 + \left(\frac{\beta}{(1-\alpha)^2}\right)^2 \cdot \sigma_{\beta}^2 \quad (3)$$

Pour utiliser cette expression nous devons calculer  $\sigma_{\alpha}$  et  $\sigma_{\beta}$ . En utilisant les expressions de  $\alpha$  et  $\beta$  nous obtenons :

$$\sigma_{\alpha}^2 = \left(\frac{1}{C_t}\right)^2 \cdot \sigma_{C_0}^2 + \left(\frac{C_0}{C_t^2}\right)^2 \cdot \sigma_{C_t}^2 \quad (4)$$

les écart types  $\sigma_{C_t}$  et  $\sigma_{C_0}$  relatif à  $C_t$  et  $C_0$  sont déterminé en fonction de la variance de mesures successives de ces concentrations. Pour l'écart type sur  $\beta$  nous obtenons :

$$\sigma_{\beta}^2 = \sum \sigma_{N_j}^2 \quad (5)$$

## ANNEXE G: FONCTION DE TRANSFERT DU SMEC UTILISE EN TANT QUE BATTERIE DE SEDIMENTATION

Dans nos expériences, la concentration totale de l'aérosol est déterminée après son passage dans le SMEC. Dans ce cas, tout l'aérosol occupe l'espace inter électrode du SMEC et celui s'apparente alors à un analyseur de mobilité dynamique d'ordre 0, encore appelé batterie de sédimentation. Pour déterminer la fraction d'aérosol pénétrante à travers le système, nous utilisons donc la fonction de transfert des analyseurs d'ordre 0. Nous représentons cette fonction sur la figure G1

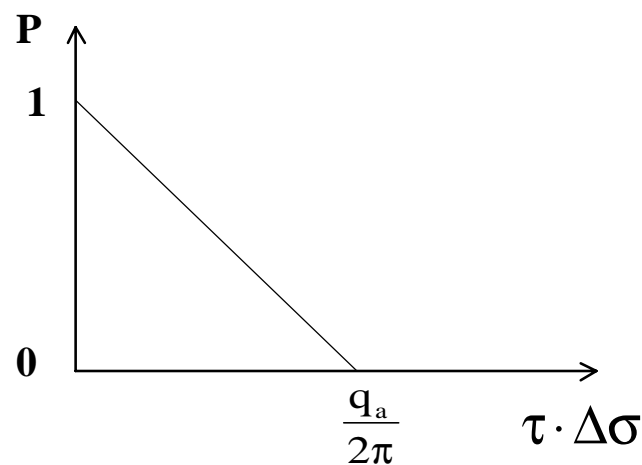


Figure G1- Fonction de transfert d'un analyseur de mobilité dynamique d'ordre 0.

La probabilité d'extraction des particules ( $P$ ) est définie en fonction du débit d'aérosol ( $Q_a$ ) et du temps de relaxation dynamique ( $\tau$ ) des particules (Renoux et Boulaud, 1998) par la relation  $P = \frac{1}{Q_a} \cdot (Q_a - 2\pi \cdot \tau \cdot \Delta\sigma_{\text{grav}})$ , où  $\Delta\sigma_{\text{grav}}$  représente la variation de la fonction de flux de champ de gravité entre l'entrée et la sortie de l'aérosol dans l'analyseur (Le Bronnec *et al.*, 1999).

Pour le SMEC, nous obtenons  $\Delta\sigma_{\text{grav}} = \frac{a^2}{2} \cdot g$ , où  $a$  représente la distance radiale entre l'entrée et la sortie de l'aérosol dans le SMEC ( $a=0,065$  m) et  $g$  l'accélération du champ de pesanteur ( $g=9,81$  m·s<sup>-2</sup>).

Pour un débit d'aérosol de 0,3 l/min et un diamètre aérodynamique égal à 1  $\mu\text{m}$ , nous obtenons une probabilité d'extraction de 90 %.

## ANNEXE H : VARIATION DE LA CONCENTRATION DE L'AÉROSOL DANS LE VOLUME D'ÉCHANTILLONNAGE PENDANT L'ANALYSE

- L'épuration et le remplissage du volume réservoir

L'étape de génération de l'aérosol radioactif doit permettre de constituer un réservoir d'aérosol. Nous devons donc maîtriser le remplissage et la purge de ce réservoir, notamment son taux de renouvellement. Pour cela, nous étudions la variation de la concentration des particules dans le volume réservoir lors de l'injection de l'aérosol ou d'air filtré.

Nous représentons sur la figure H1 le schéma du montage expérimental que nous avons réalisé pour cette étude.

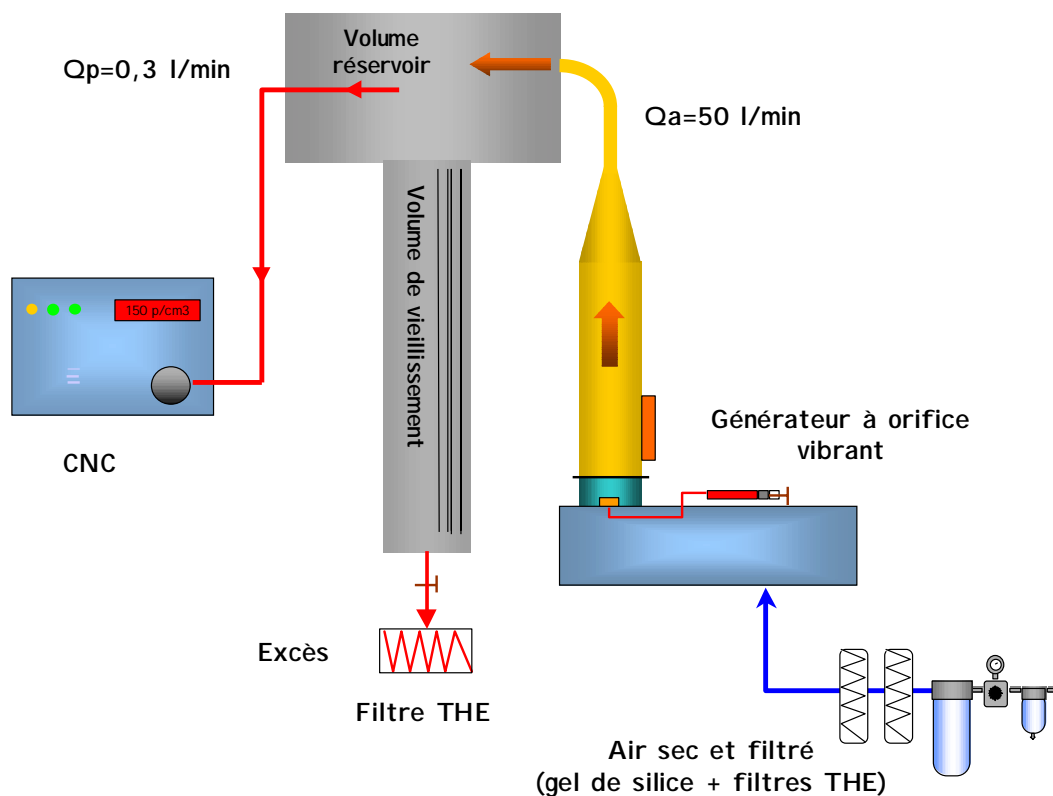


Figure H1 - Schéma du montage expérimental pour l'étude du remplissage et de la purge de l'aérosol.

Nous assimilons notre volume réservoir à une enceinte ventilée. Pour décrire l'évolution de la concentration de l'aérosol dans cette enceinte, nous supposons qu'elle constitue une zone de mélange homogène. Cette hypothèse est fondée sur la fonction d'homogénéisation jouée par le jet d'aérosol ou d'air filtré au point d'injection.

Lors de l'injection d'un aérosol de concentration  $C_t$  dans le volume, nous pouvons exprimer la variation de sa concentration ( $C$ ) dans le volume par la relation :

$$\frac{dC}{dt} = \frac{Q_a}{v} \cdot (C_t - C), \quad (1)$$

où  $Q_a$  représente le débit injection de l'air vecteur des aérosols et  $v$  le volume de l'enceinte.

Lors de la purge aéraulique du volume, nous injectons de l'air filtré toujours avec un débit  $Q_a$ , la variation de la concentration s'exprime alors par :

$$\frac{dC}{dt} = -\frac{Q_a}{v} \cdot C. \quad (2)$$

Nous remarquons que l'étude du remplissage est équivalente à celle de la purge aéraulique. Il suffit donc de déterminer le taux de renouvellement  $\tau_v$  ( $s^{-1}$ ) défini par :

$$\tau_v = \frac{Q_a}{v}. \quad (3)$$

Pour déterminer expérimentalement le taux de renouvellement du volume réservoir, il est plus commode d'étudier la phase de purge aéraulique de l'enceinte. Dans ce cas, la concentration est déterminée en intégrant l'équation (2). Nous obtenons alors pour une concentration initiale égale à  $C_t$ , la relation :

$$\frac{C}{C_t} = \exp(-t \cdot \tau_v). \quad (4)$$

Pour déterminer  $\tau_v$ , nous remplissons le volume avec un aérosol, puis nous mesurons l'évolution de la concentration pendant l'injection d'air filtré provenant du générateur.

Nous représentons sur la figure H2 la variation de la concentration de l'aérosol en fonction du temps, obtenue pour un débit égal à 50 l/min. Nous avons normalisé cette concentration par rapport à la concentration initiale de l'aérosol. Nous représentons également la courbe d'ajustement exponentielle de nos résultats expérimentaux, ainsi que son équation.

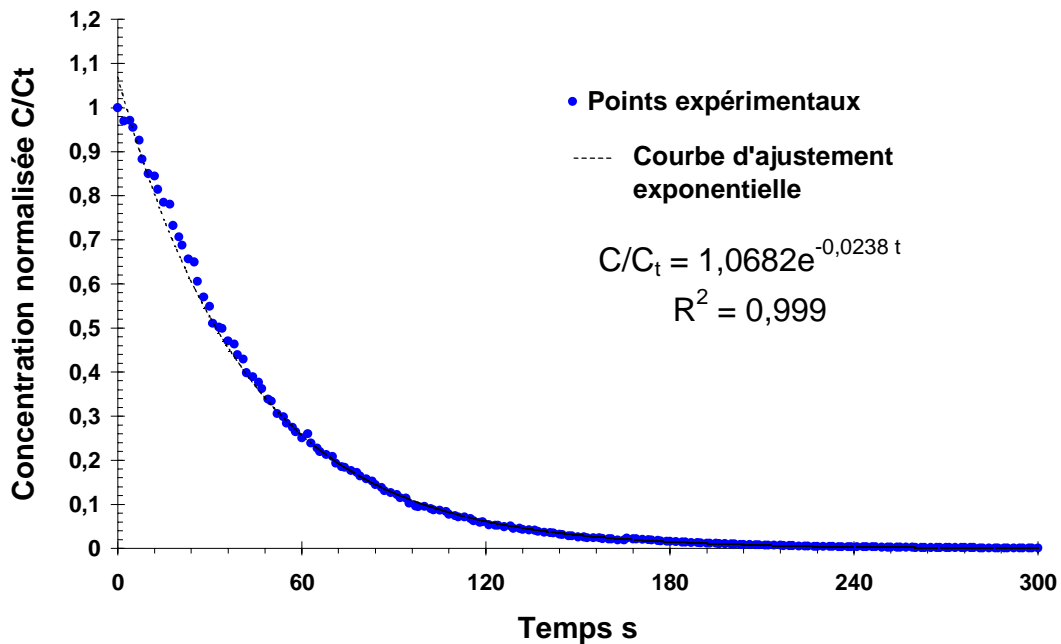


Figure H2 - Variation de la concentration de l'aérosol pendant la purge aéraulique du volume réservoir

D'après la courbe d'ajustement, nous pouvons déduire que l'évolution de la concentration suit une loi exponentielle conformément aux prévisions théoriques (eq. 4). Nous pouvons également déduire de nos résultats que le renouvellement du volume est homogène, et qu'il n'y a pas de zone morte. En utilisant l'équation de la courbe d'ajustement, nous obtenons facilement le taux de renouvellement expérimental. En effet, celui-ci est égal à  $2,38 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Le taux de renouvellement théorique est déterminé en utilisant la relation (3). Le volume effectif de notre volume étant égal à 37 l et le débit étant égal à 50 l/min, nous obtenons ainsi un taux théorique égal à  $2,25 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Nous constatons un très bon accord entre les valeurs théorique et expérimentale, l'écart relatif étant égal à 5 %.

En utilisant la relation (4), nous pouvons montrer que la concentration initiale est réduite d'un facteur 10 pour un temps de renouvellement égal à  $2,3/\tau_v$ . Cette remarque est également valable pour le remplissage du volume. Nous pouvons ainsi vérifier que notre temps de remplissage ( $\approx 100$  s) est inférieur au temps disponible pour la génération de l'aérosol.

- Evolution de la concentration et temps de vieillissement de l'aérosol pendant l'analyse.

Pour l'analyse de la distribution des charges électriques de l'aérosol, nous effectuons un prélèvement continu, soit dans le volume réservoir, soit, dans le volume de vieillissement. Pour compenser le débit prélevé nous injectons un débit équivalent d'air filtré dans le réservoir. En conséquence, nous obtenons une variation de la concentration de l'aérosol au cours de l'analyse. Pour maîtriser cette variation, la configuration de l'injection d'air doit être étudiée pour éviter les zones mortes et ainsi obtenir un mélange homogène décrit par l'équation (2). Compte tenu du faible débit d'air filtré, nous injectons celui-ci par l'intermédiaire d'un tube capillaire, pour obtenir un jet suffisant afin de mélanger de façon homogène l'aérosol contenu dans le volume réservoir.

Par ailleurs, le temps de renouvellement du volume étant important, nous devons tenir compte de l'effet de la sédimentation des particules sur la variation de la concentration. Nous avons déjà vu que cet effet est notable dans le SMEC lorsque le temps de séjour des particules est important.

Le perte d'aérosol est alors fonction de la vitesse de sédimentation ( $V_s$ ) des particules et de la surface de dépôt ( $S_d$ ). L'évolution de la concentration ( $C$ ) dans le volume réservoir est alors déterminée par la relation :

$$\frac{dC}{dt} = -\frac{Q_i}{v} \cdot C - \frac{V_s \cdot S_d}{v} \cdot C, \quad (5)$$

où  $Q_i$  représente le débit d'injection d'air filtré qui est égal au débit d'extraction du prélèvement.



Le taux de renouvellement effectif s'exprime alors par la relation :

$$\tau_v = \frac{Q_i + V_s \cdot S_d}{V} \quad (6)$$

Pour étudier conjointement le taux de renouvellement effectif de l'aérosol et le temps d'évolution de l'aérosol dans le volume de vieillissement, nous réalisons le montage expérimental représenté sur la figure H3.

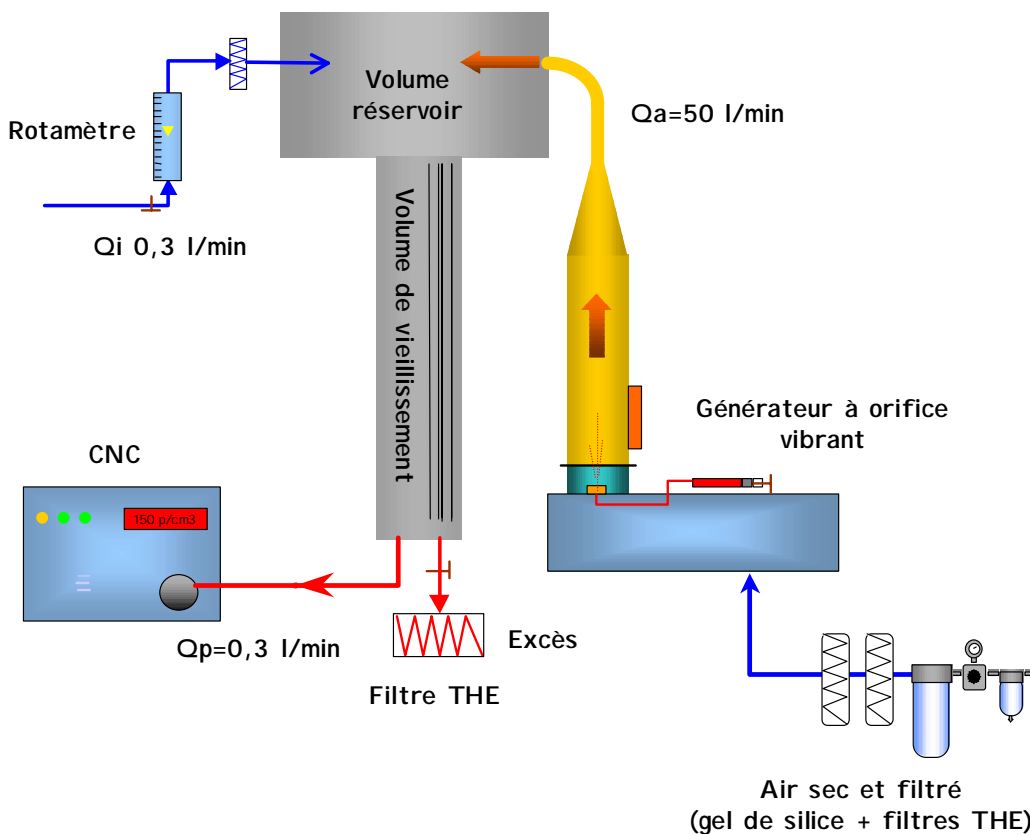
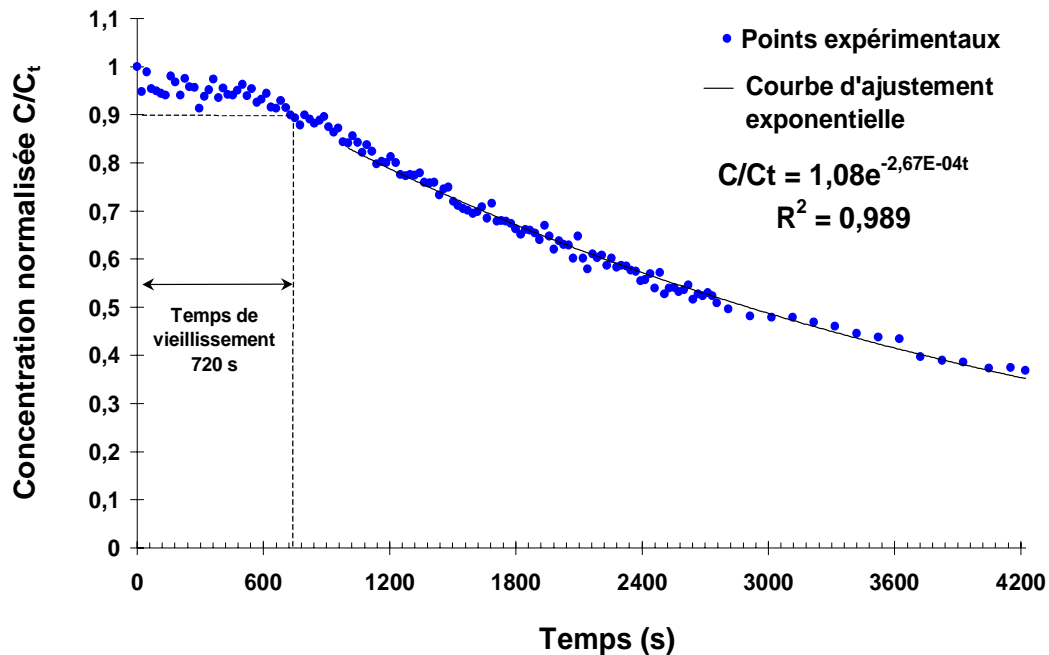


Figure H3 - Schéma du montage expérimental pour l'étude de l'évolution de la concentration et du vieillissement de l'aérosol.

La première étape consiste à générer l'aérosol simulant et à remplir de façon homogène l'ensemble du volume d'échantillonnage. Le débit d'aérosol et la génération sont

ensuite arrêtés. A partir de cet instant nous injectons l'air filtré dans le volume réservoir et nous analysons la concentration de l'aérosol à la sortie du volume de vieillissement.

Nous représentons sur la figure H4 l'évolution de la concentration obtenue pour un débit d'injection égal à 0,3 l/min.



**Figure H4** - Mesure de l'évolution de la concentration de l'aérosol dans le volume de vieillissement pour un débit d'injection égal à 0,3 l/min.

Nous remarquons sur la figure H4 que l'évolution de la concentration dans le volume de vieillissement comporte deux parties. Une première où la concentration est stable, puis une seconde où la concentration décroît exponentiellement.

La zone de concentration stable correspond au temps de vieillissement de l'aérosol dans la batterie de tubes. En effet, dans cette partie du volume, l'écoulement est laminaire et s'apparente à un "piston" la concentration de l'aérosol est donc constante. Nous représentons sur la figure H5 nos données expérimentales avec une échelle de temps logarithmique, ce qui nous permet de bien distinguer les deux régimes d'évolution de la concentration.

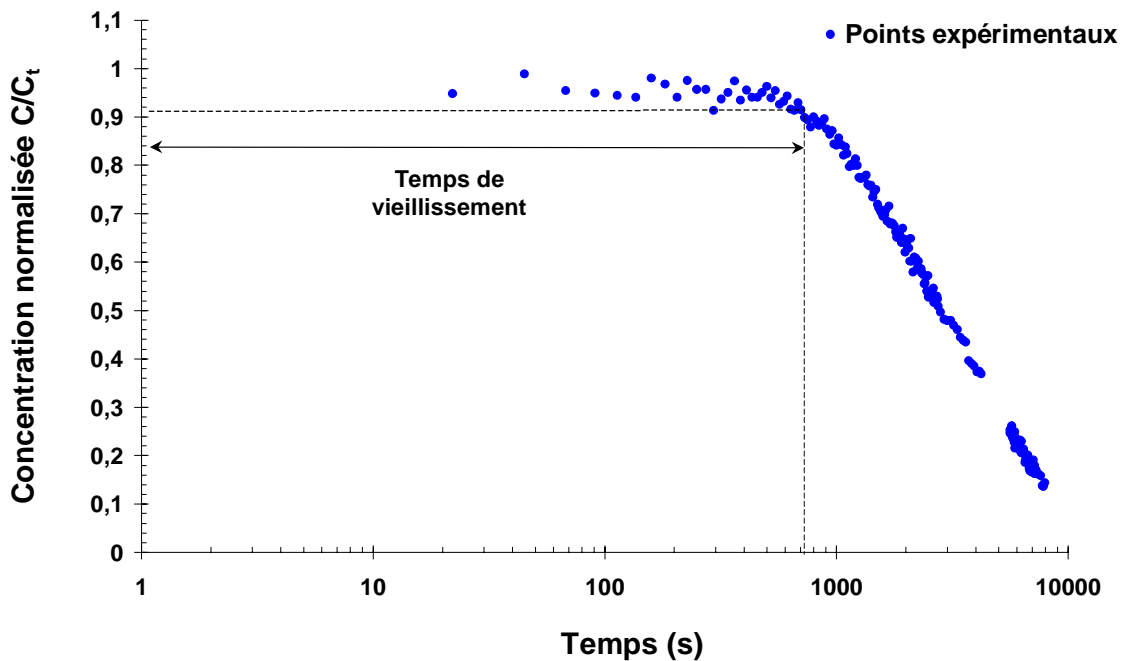


Figure H5 - Mesure de l'évolution de la concentration de l'aérosol dans le volume de vieillissement pour un débit d'injection égal à 0,3 l/min.

Nous calculons théoriquement le temps de vieillissement d'après la hauteur des tubes, leur section et le débit d'aérosol. Nous obtenons ainsi un temps égal à 770 s pour un débit de 0,3 l/min. Signalons, que la vitesse de sédimentation de l'aérosol a une influence non négligeable sur le temps de vieillissement. En effet, la vitesse de l'écoulement aéraulique dans la batterie de tubes étant faible, nous devons alors prendre également en compte la vitesse de sédimentation pour calculer avec précision le temps de résidence. Pour des particules de diamètre aérodynamique égal à 1,07  $\mu\text{m}$ , nous obtenons ainsi un temps égal à 740 s.

Le temps de vieillissement expérimental est estimé à partir de la figure H4. Il correspond à la durée pour laquelle la concentration est supérieure à 90 % de la concentration initiale. Nous obtenons ainsi expérimentalement un temps égal à 720 s. Nous constatons donc un très bon accord entre les valeurs théorique et expérimentale.

La zone de décroissance exponentielle de la concentration correspond au mélange de l'aérosol avec l'air filtré dans le volume réservoir, mais aussi à la sédimentation des particules. Le taux de renouvellement effectif est déterminé expérimentalement à partir de la courbe

d'ajustement exponentielle de nos données. Il est égal à  $2,67 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ . Nous calculons ensuite le taux théorique en utilisant la relation (6), la vitesse de sédimentation étant calculée pour des particules de diamètre aérodynamique égal à  $1,07 \text{ }\mu\text{m}$ . Nous obtenons ainsi  $\tau_v = 2,71 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , résultat en très bon accord avec la valeur expérimentale. Pour montrer l'effet important de la sédimentation sur la concentration de l'aérosol, nous calculons alors le taux de renouvellement en négligeant cet effet. Il est alors égal à  $1,35 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , ce qui est sensiblement différent de la valeur expérimentale.

Nous mesurons également l'évolution de la concentration dans le volume de vieillissement pour un aérosol de diamètre aérodynamique égal à  $1,07 \text{ }\mu\text{m}$  et pour un débit d'injection d'air filtré égal au débit d'analyse, soit  $0,2 \text{ l/min}$ . Nous représentons nos résultats sur la figure H6. Nous présentons également les mêmes résultats, mais avec une échelle de temps logarithmique sur la figure H7.

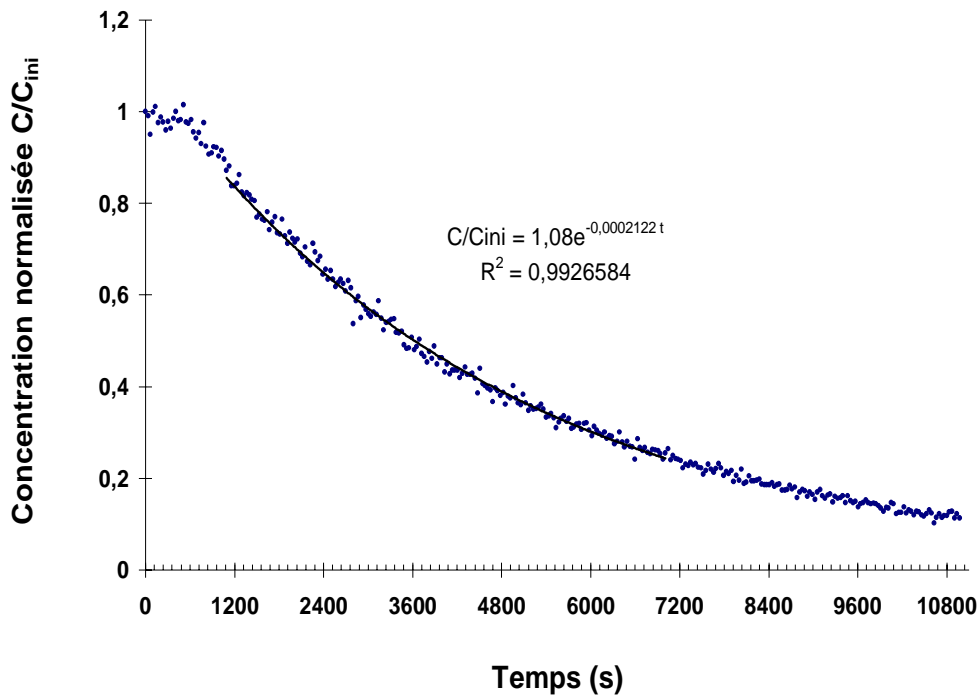


Figure H6 - Variation de la concentration pour un débit de  $0,2 \text{ l/min}$

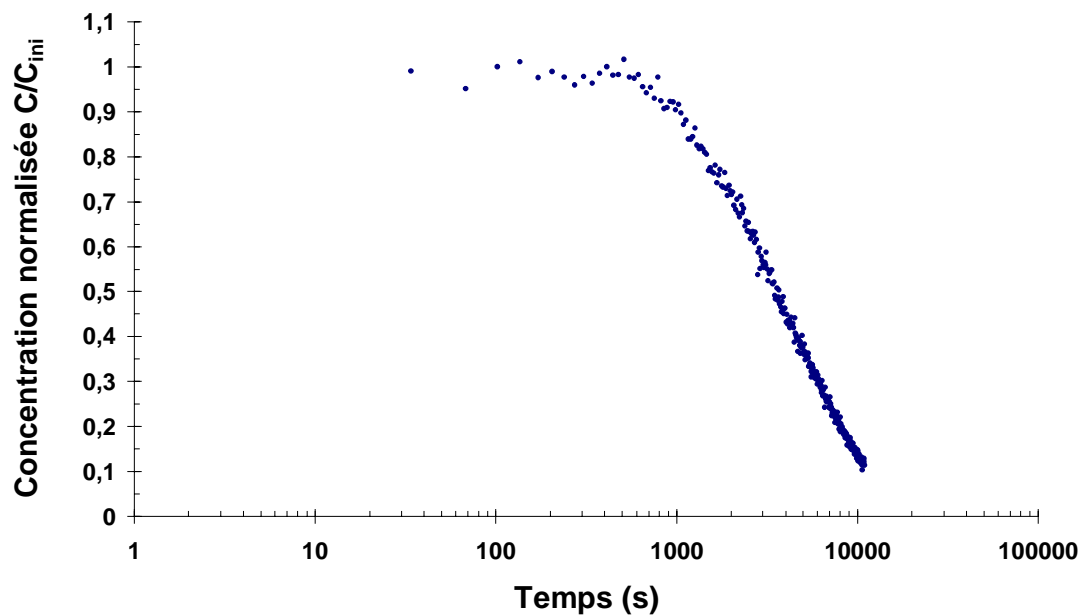


Figure H7 - Variation de la concentration pour un débit de 0,2 l/min

Le taux de renouvellement expérimental est  $\tau_v=2,12 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , et la valeur théorique est égale à  $\tau_v=2,26 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , l'accord entre les deux résultats est donc très bon, l'écart relatif étant inférieur à 7 %. Les temps de vieillissements expérimental et théorique sont respectivement égaux à 1000 s et 1080 s.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Adachi M., Kousaka Y. and Okuyama K. (1985) Unipolar and bipolar diffusion charging of ultrafine aerosol particles. *J. Aerosol Science*. **16-2**, 109-123.
- Adachi M., Okuyama K., Kousaka Y., Kozuru H. and Pui D.H.Y (1989) Bipolar diffusion charging of aerosol particles under high particle / ion concentration ratios. *Aerosol Science and Technology*. **11**, 157-167.
- Adachi M., Pui D.H.Y. and Liu B.H.Y. (1993) Aerosol charge neutralization by a corona ionizer. *Aerosol Science and Technology*. **18**, 48-58.
- Ammerich M. (1988) Réalisation d'une installation d'étalonnage de moniteurs de contamination atmosphérique à l'aide d'aérosols radioactifs calibrés (ICARE). Mémoire d'ingénieur C.N.A.M., rapport CEA- R- 5484.
- Aplin K.L., Harrison R.G. and Wilkinson S. (1998) An electrical method of urban pollution measurement. *J. Aerosol Science*. **29**, Suppl. 1, s869-s870.
- Berezhnoi V.M., Zubarev V.V., Dunaeva N.P., Kirichenko V.N. and Petryanov-Sokolov I.V. (1977a) Emission electrification of  $\beta$ -active aerosol particles in an external electric field. *Soviet Physics Doklady*. **22-12**, 685-687.
- Berezhnoi V.M., Dunaeva N.P., Zubarev V.V., Kirichenko V.N. and Petryanov-Sokolov I.V. (1977b) Influence of the stopping power of a gaseous medium on the electrification of  $\beta$ -active aerosol particles in an external electric field. *Soviet Physics Doklady*. **22-12**, 771-772.
- Berezhnoi V.M., Kirichenko V.N. and Petryanov I.V. (1978) Stationnary distribution of the charges of  $\beta$ -active aerosol particles. *Soviet Physics Doklady*. **23-10**, 760-762.
- Berglund R.N. and Liu B.H.Y. (1973) Generation of monodisperse aerosol standards. *Environment Science and Technology*. **7**, 147-160.
- Bering E.A., Few A.A. and Benbrook J.R. (1998) The global electric circuit. *Physics Today*. Oct 98, 24-30.
- Bernigau N.G. and Luck H.O. (1986) The principle of the ionization chamber in aerosol measurement techniques-A review. *J. Aerosol Science*. **17**, 511-515.
- Billard F., Bricard J., Madelaine G. et Pradel J. (1965) Etude expérimentale de la charge électrique des aérosols ultra fins par marquage radioactif. *Journal de Physique Appliquée*. **26-5**, 169-176.

- Billard F. Madelaine, G. and Delhay J (1970) Quelques remarques sur la génération et la mesure des sphères de latex polystyrène. *J. Aerosol Science*. **1**, 357-367.
- Bogen D.C. (1970) Preparation of radioactive-labeled polystyrene latex monodisperse submicron aerosols. *American Industrial Hygiene Association Journal*. **31**, 349-352.
- Boulaud D., Chouard J.C., Frambourt C. and Madelaine G. (1983) Study of a sedimentation battery. *J. Aerosol Science*. **14**, 421-424.
- Bricard J. (1962) La fixation des petits ions atmosphériques sur les aérosols ultra fins. *Geophys. Pura. Appl.* **51**, 237-242.
- Bricard J., Pradel J. et Renoux A. (1962) Equilibre ionique et spectre granulométrique des aérosols naturels. Application aux ions radioactifs. *Annales de Géophysique*. **18-4**, 384-387.
- Bricard J., Girod P. et Pradel J.(1965) Etat de charge des aérosols ultra fins en milieu faiblement ionisé application aux gros ions atmosphériques. *J. de Physique Appliquée*. **26**, 141A-147A.
- Bricard J. and Pradel J. (1966) Electric charge and radioactivity of naturally occurring aerosols. In *Aerosol Science* edited by C.N. Davies, Academic Press.
- Bricard J., Cabane M., Madelaine G. et Vigla D. (1970) Spectre de mobilité des petits ions de l'air. *J. de recherche Atmospheriques*. 107-113.
- Bricard J., Cabane M., Madelaine G. and Vigla D. (1972) Formation and properties of neutral ultrafine particles and small ions conditioned by gaseous impurities of the air. *J. of Colloid and Interface Science*, **39-1**, 42-58.
- Bricard J., Madelaine G. et Pourprix M. (1976) Contribution à l'étude de la charge électrique des aérosols : description de l'appareillage-I. *J. Aerosol Science*. **7**, 37-42.
- Bricard J., Delattre P., Madelaine G. and Pourprix M. (1976) Detection of the ultra-fine particles by means of a continuous flux CNC. In *Fine particles: aerosol generation, measurement, sampling and analysis*. Ed. by B.Y.H Liu.
- Bricard J. (1977) Physique des aérosols 2<sup>o</sup> partie. Rapport CEA-R-4831(2).
- Bricard J., Cabane M. and Madelaine G. (1977) Formation of atmospheric ultrafine particles and ions from trace gases. *J. of Colloid and Interface Science*, **58-1**, 113-124.
- Brown R.C. (1997) Tutorial review: simultaneous measurement of particle size and particle charge. *J. Aerosol Science*. **28-8**, 1373-1391.
- Burtscher H., Scerrer L. and Siegmann H.C. (1982) Probing aerosols by photoelectric charging. *J. Applied Physics*. **53-5**, 3787-3791.
- Burtscher H., Scherrer L. and Siegmann H.C. (1982) Probing aerosols by photoelectric charging. *J. Applied Physics*. **55-5**, 3787-3791.

- Burtscher H, Reis A. and Schmidt-Ott A. (1986) Particulate charge in combustion aerosols. *J. Aerosol Science*. **17-1**, 47-51.
- Cabane M. (1973) Spectre de mobilité des ions créés dans les gaz à la pression atmosphérique. Thèse de doctorat, université Paris VI.
- Cabane M., Krien P., Madelaine G. and Bricard J. (1976) Mobility spectra of ions created in gases under atmospheric pressure. *J. of Colloid and Interface Science* **57-2**, 289-300.
- Cabane M., Krien P., Madelaine G. et Bricard J. (1976) Mobilité apparente des ions  $H^+(H_2O)_4$  et  $H^+(H_2O)_5$ . *C.R. Acad. Sc. Paris*. **282**, 507-509.
- Cardona M. and Ley L (1978) Photoemission in solids I. In *Topics in Applied Physics*, **26**. Ed. by Cardona *et al.* (Springer Berlin).
- Chalmers J.A. (1967) *Atmospheric Electricity*. 2<sup>nd</sup> Edition Pergamon Press.
- Chang J. S. (1983) Aerosol particle growth rate in an ionized environment. *J. Aerosol Science*. **14-3**, 391-393.
- Cheng Y.S. and Yeh H.C. (1980) Theory of a screen-type diffusion battery. *J. Aerosol Science*. **11**, 313-320.
- Clement et Harrison (1990) Electric charge effects on aerosol behaviour. In *Workshop on aerosol behaviour and thermal-hydraulics in the containment*. OECD/CSNI n°176. 449-461.
- Clement C.F. and Harrison R.G. (1991a) Charge distributions on aerosols. In *Electrostatics 1991: Proc. 8<sup>th</sup> Int. Conf.* . Institute of Physics Conf. Series N°118. 275-280.
- Clement C.F. and Harrison R.G (1991b) Criteria for aerosol charging. In *Proceeding of V<sup>th</sup> anual conference*, The aerosol society, Loughborough. 149-154.
- Clement C.F. and Harrison R.G. (1991c) Self-charging of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. **22**, Suppl. 1, s175-s178.
- Clement C.F. and Harrison R.G. (1992) The charging of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. **23-5**, 481-504.
- Clement C.F., Calderbank D.M.J. and Harrison R.G. (1994) Radioactive aerosol charging with spatially varying ion concentrations. *J. Aerosol Science*. **25-4**, 623-637.
- Clement C.F., Barrett J.C. and Harrison R.G. (1995) The diffusive penetrability of particles into energy barriers. *J. Aerosol Science*. **26-5**, 735-743.
- Clement C.F., Clement R.A. and Harrison R.G. (1995) Charge distribution and coagulation of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. **26-8**, 1207-1225.
- Clement C.F. and Harrison R.G. (1996) The motion of radioactive aerosol in electric fields. *J. Aerosol Science*. **27**, Suppl. 1, s191-s192.



- Clement C.F. (1997) Aerosol deposition in alternative NATACHA designs. QuantiSci , Oxfordshire RG9 1AT. CEA1-6083A/1.
- Clement C.F. (1998) The behaviour and detection of radioactive aerosols in NATACHA. *J. Aerosol Science*. **29**, Suppl. 1, s1175-s1176.
- Clement et Harrison (2000) Enhanced localized charging of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. **31-3**, 363-378.
- Cohen B.S. Xiong J.Q. and Li W. (1996) The influence of charge on the deposition behavior of aerosol particles with emphasis on singly charged nanometer sized particles. In *Aerosol Inhalation: Recent Research Frontiers*. Edited by Marijnissen J.M.C. and Gradon L. 153-164.
- Cooper D.W. and Reist P.C. (1973) Neutralizing charged aerosols with radioactive sources. *J. of Colloid and Interface Science*, **45-1**, 17-26.
- Ehrenhaft F. (1925) The electrical behaviour of radioactive colloidal particles of the order of  $10^{-5}$  cm as observed separately in a gaz. *Phil. Mag.* **49**, 633-648.
- Emets E.P., Kascheev V.A. and Poluektov P.P. (1991) Simultaneous measurement of aerosol particle charge and size distributions. *J. Aerosol Science*. **22-3**, 389-394.
- Emets E.P., Kascheev V.A. and Poluektov P.P. (1993) Statistics of aerosol electric charging. *J. Aerosol Science*. **24-7**, 867-877.
- Emi H., Shintani E., Namiki N. and Otani Y. (1998) Measurement of the ions mobility distribution at a new ion mobility analyser with separation in axial direction to the flow. *J. Aerosol Science*. **29**, Suppl. 1, s1247-s1248.
- Fendel W. and Schmidt-Ott A. (1994) Chemical characterisation of nano particles via multiple photoelectric charging. *J. Aerosol Science*. **25**, Suppl. 1, s531-s532.
- Filippov A.V., Schmidt-Ott A. and Fendel W. (1993) Escape probability of photoelectrons from particles. . *J. Aerosol Science*. **24**, Suppl. 1, s501-s502.
- Filippov A.V.(1994) Charge distribution among non-spherical particles in a bipolar ion environment. *J. Aerosol Science*. **25-4**, 611-615.
- Fjeld R. A., Gauntt R.O. and A.R. McFarland (1981) Aerosol charging by bipolar ions of unequal current densities : experiments in low electric field. *J of Colloid and Interface Science*. **83-1**, 82-89.
- Fjeld R.A. and McFarland A.R. (1986) Bipolar charging in the transition regime. *J. Aerosol Science*. **17-4**, 653-667.

- Flanagan V.P.V. and O'Connor T.C. (1961) Ionization equilibrium in aerosols. *Geophys. Pura. Appl.* **50**, 148-154.
- Flanagan V.P.V. (1966) Measurement of the combination of small ions with aerosols particles. *Pure Appl. Geophys.* **64**, 197-203.
- Fuchs N.A. (1963) On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geophys. Pura. Appl.* **56**, 185-193.
- Fuchs N.A. (1964) *The mechanics of aerosols*. Translation edited by C.N. Davies, Pergamon press.
- Fuchs N.A. (1973) Latex aerosols - Caution ! *J. Aerosol Science.* **4**, 405-410.
- Gauntt R.O., Fjeld R.A. and A.R. McFarland (1981) Characterization of aerosol mobility distribution by integral mobility analysis – The method of mobility moments. *J. Aerosol Science.* **12**, 109-117.
- Gensdarmes F., Boulaud D. and Renoux A. (1998) Aerosol charging under gamma irradiation. *J. Aerosol Science.* **29**, Suppl. 1, s851-s852.
- Gensdarmes F., Boulaud D. and Renoux A. (1999) The electric charging of aerosols in high ionized atmosphere. *J. Aerosol Science.* **30**, Suppl. 1, s559-s560.
- Gentry J. and Brock J.R. (1967) Unipolar diffusion charging of small aerosol particles. *The Journal of Chemical Physics.* **47**, 64-69.
- Gunn R. (1954) Diffusion charging of atmospheric droplets by ions and the resulting combination coefficients. *Journal of meteorology*, **11**, 339-347.
- Gunn R. (1955) The statistical electrification of aerosols by ionic diffusion. *J. of Colloid Science.* **10**, 107-119.
- Gunn R. and Woessner R.H. (1956) Measurement of the systematic electrification of aerosols. *J. of Colloid Science.* **11**, 254-259.
- Haaf W. (1980) Accurate measurement of aerosol size distribution – I Theory of a plate condenser for bipolar mobility analysis. *J. Aerosol Science.* **11-2**, 189-200.
- Harrison G. (1992) Aerosol charging and radioactivity. Ph.D. Thesis, London University.
- Harrison R.G. (1998) The atmospheric significance of charged ions. *J. Aerosol Science.* **29**, Suppl. 1, s843-s844.
- Hinds W.C. (1998) *Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*. Wiley & Sons ed.
- Hoppel W.A. (1978) Determination of the size distribution from the mobility distribution of the charged fraction of the aerosols. *J. Aerosol Science.* **9-1**, 41-54.

- Hoppel W.A. and Frick G.M. (1986) Ion-Aerosol attachment coefficients and the steady-state charge distribution on aerosols in a bipolar ion environment. *Aerosol Science Technology*. **5**, 1-21.
- Hoppel W.A. and Frick G.M. (1990a) Comment on the comparison of measured and calculated values of ion aerosol attachment coefficients. *Aerosol Science Technology*. **11**, 254-258.
- Hoppel W.A. and Frick G.M. (1990b) The nonequilibrium character of the aerosol charge distribution produced by neutralizers. *Aerosol Science Technology*. **12**, 471-496.
- Houlaki S. (1986) Etude de la loi de charge d'un aérosol submicronique en milieu bipolaire. Application à la classification électrostatique des aérosols par l'Analyseur Différentiel de Mobilité Electrique. Thèse de Docteur Ingénieur. Université Paris XII.
- Huertas M.L. (1972). Contribution à l'étude de la nature des ions positifs de la troposphère. Thèse de Doctorat, université de Toulouse.
- Hussin A., Scheibel H.G., Becker K.H. and Porstendörfer J. (1983) Bipolar diffusion charging of aerosol particles I: experimental results within the diameter range 4-30 nm. *J. Aerosol Science*. **14-5**, 671-677.
- Israël H. (1957) *Atmosphärische Elektrizität. Teil 1*, Leipzig Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig.
- Israël H. (1961) *Atmosphärische Elektrizität. Teil 2*, Leipzig Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig.
- Ivanov V.D., Kirichenko V.N. and Petryanov I.V. (1969) Charging of alpha-active aerosols by secondary electron emission. *Soviet Physics - Doklady*. **13-9**, 902-904.
- Ivanov V.D. and Kirichenko V.N. (1970) Spontaneous unipolar charging of beta-active "hot" aerosol particles. *Soviet Physics Doklady*. **14-9**, 859-862.
- Ivanov V.D., Kirichenko V.N., Berezhnoi V.M. and Petryanov I.V. (1972) Effect of intrinsic sedimentation velocity of beta-active "hot" particles on their steady-state electrical charge in the presence of an impurity of a contaminant aerosol. *Soviet Physics Doklady*. **17-4**, 374-377.
- Ivanov V.D., Kirichenko V.N., Shan'gin B.V. and Berezhnoi V.M. (1974) Method and apparatus for the investigation of the electrical charging of beta-active "hot" aerosol particles. *Colloid Journal (USSR)*. **36**, 468-472.
- John W. and Davis J. (1974) The measurement of the charge distribution on monodisperse aerosols. *Atmospheric Environment*. **8**, 1029-1034.
- Juan M. (1965) Contribution à l'étude de la mobilité des petits ions radioactifs. Thèse de Doctorat, Université de Toulouse.

- Jung T., Burtscher H. and Schmidt-Ott A. (1988) Multiple charging of ultrafine aerosol particles by aerosol photoemission (APE). *J. Aerosol Science*. **19**-4, 485-490.
- Juozaitis A. and Butkus D. (1999) Effect of krypton-85 beta radiation on air ionization and aerosol transformation processes. . *J. Aerosol Science*. **30**, Suppl. 1, s133-s134.
- Kaplan I. (1963) *Nuclear Physics*. 2<sup>nd</sup> edition, Addison-Wesley Ed.
- Kascheev V.A., Kolomeytsev G.Y. and Poluektov P.P. (1991) Electric charging of radioactive aerosols *J. Aerosol Science*. **22**, Suppl. 1, s735-s738.
- Keefe D., Nolan P.J. and Rich T.A. (1959) Charge equilibrium in aerosols according to the Boltzmann law. *Proc. Royal Irish Acad.* **60**, 27-45.
- Kerouanton D., Tymen G. and Boulaud D. (1996) Small particle diffusion penetration of an annular duct compared to other geometries. . *J. Aerosol Science*. **27**-2, 345-349.
- Kirichenko V.N. and Ivanov V.N. (1970) Kinetics of unipolar charging of beta-active "hot" particles in an electric field. *Soviet Physics Doklady*. **14**-9, 884-886.
- Kirichenko V.N. and Suprun N.N. (1974) Electric charges of beta-active hot aerosol particles in turbulent flow. *Soviet Physics Doklady*. **19**-3, 147-149.
- Knoll G.F. (1989) *Radiation detection and measurement*. John Wiley & Sons Ed..
- Knutson E.O. and Whitby K.T. (1975a) Aerosol classification by electric mobility: apparatus, theory, and applications. *J. Aerosol Science*. **6**, 443-451.
- Knutson E.O. and Whitby K.T. (1975b) Accurate measurement of aerosol electric mobility moments. *J. Aerosol Science*. **6**, 453-460.
- Knutson E.O. (1976) Extended electrical mobility method for measuring aerosol particle size and concentration. In *Fine particles: aerosol generation, measurement, sampling and analysis*. Ed. by B.Y.H Liu.
- Kojima H. and Sekikawa T. (1973) An attempt for obtaining the aerosol size distribution. *J. of the Meteorological Society of Japan*. **51**, 287-292.
- Kojima H. (1978) Measurement of equilibrium charge distribution on aerosols in bipolar ionic atmosphere. *Atmospheric Environment*. **12**, 2363-2368.
- Kousaka Y., Adachi M., Okuyama K., Kitada N. and Motouchi T. (1983) Bipolar charging of ultrafine aerosol particles. *Aerosol Science and Technology*. **2**, 421-427.
- Kvasnicka J. and Riley G. (1990) Electrostatic charge on uranium ore dust. *J. Aerosol Science*. **21**-2, 289-297.
- Layly V. D. (1998) Aerosol behaviour in a closed vessel : analysis of the Phebus FPT0 test, aerosol phase in the containment. Note Technique SEMAR 99/98 and IP/98/231, 64 pp.

- Le Bronnec E. (1998) Utilisation des effets de gravité dans le spectromètre de mobilité électrique circulaire (SMEC) pour remonter aux dimensions, à la masse, et au facteur de forme dynamiques des aérosols. Thèse de Doctorat, université Paris XII.
- Le Bronnec E., Renoux A., Boulaud D. and Pourprix M. (1999) Effect of gravity in differential mobility analysers. A new method to determine the density and mass of aerosol particles. *J. Aerosol Science*. **30**, 89-103.
- Liebhaber F.B., Juozaitis A., Willeke K., Baron P., Talaska G. and Chen C.C. (1984) Technique for assessing the electrical charge levels of aerosols. *American Industrial Hygiene Association J.* **55-7**, 610-618.
- Lissowski P. (1940) Das laden von aerosolteilchen in einer bipolaren ionenatmosphäre. *Acta Physicochimica U.R.S.S.* vol XIII n° 2, 157-192.
- Liu B.H.Y., Berglund R.N. and Agarwal J.K. (1974) Experimental studies of optical particle counters. *Atmospheric Environment*. **8**, 717-732.
- Liu B.H.Y. and Pui D.H.Y. (1974a) Electrical neutralization of aerosols. *J. Aerosol Science*. **5**, 465-472.
- Liu B.H.Y. and Pui D.H.Y. (1974b) A submicron aerosol standard and the primary absolute calibration of the condensation nuclei counter. *J. Colloid and Interface Science*. **47**, 155-171.
- Liu B.H.Y. and Pui D.H.Y. (1974c) Equilibrium bipolar charge distribution of aerosols. *J. Colloid and Interface Science*. **49**, 305-312.
- Loeb L.B. (1961) *Basic processes of gaseous electronics*. University of California Press, Berkeley and Los Angeles.
- Loyalka S.K. (1983) Mechanics of aerosols in nuclear reactor safety : a review. *Progress in Nuclear Energy*. **12-1**, 1-56.
- McMurry P.H. and Rader D.J. (1985) Aerosol wall losses in electrically charged chambers. *Aerosol Science and Technology*. **4**, 249-268.
- Madelaine G. (1968) Formation et évolution des aérosols dans l'air filtré et dans l'air naturel, action de la radioactivité. Thèse, université de Paris.
- Madelaine G., Perrin M.L. and Renoux A. (1980) Formation of ultrafine particles produced by radiolysis and photolysis. *J. of Geophysical Research*. **85**, 7471-7474.
- Magnaud J.P. and Goldstein S. (1989) The finite element version of the TRIO code, 7th International Conference in Fluid Mechanics, Huntsville, USA, 3-7 April 1989.

- Malet J. (1997) Transport et dépôt des aérosols nanométriques - Application à la fraction libre des descendants à vie courte du Radon. Thèse de Doctorat. Université Paris XII.
- Matsoukas T. (1994) Charge distributions in bipolar particle charging. *J. Aerosol Science*. **25**-4, 599-609.
- Mayya Y.S. (1994) On the "Boltzmann law" in bipolar charging. *J. Aerosol Science*. **25**-4, 617-621.
- Mayya Y.S. and Holländer W. (1995) Ion densities and particle charges for alpha ionization in an aerosol atmosphere: columnar recombination corrections. *Aerosol Science and Technology*. **23**, 628-640.
- Mazumder M.K., Ware R.E and Hood W.G. (1983a) Simultaneous measurement of aerodynamic diameter and electrostatic charge on a single-particle basis. In *Measurement of suspended particles by quasi-elastic light scattering*. Willey-Interscience ed., N.Y.
- Mazumder M.K., Ballard G.S., Rimmer T.W. Cramer D.M. and Young P.L. (1983b) Real-time measurements and control of particle charge as applied to electrostatically enhanced fabric filters. Technical progress report, University of Arkansas. UCRL-15582.
- Megaw W.J. and Wells A.C. (1969) A high resolution charge and mobility spectrometer for radioactive submicrometre aerosols. *J. of Scientific Instrument (J. of Physics E)*. **2**-2, 1013-1016
- Melandri C., Tarroni G. Prodi V., De Zaiacomo T., Formignani M. and Lombardi C.C. (1983) Deposition of charged particles in the human airways. *J. Aerosol Science*. **14**-5, 657-669.
- Mesbah B., Pourprix M., Boulaud D. et Renoux A. (1993) Contamination contrôlée des surfaces. Actes des 10<sup>ème</sup> journées d'étude sur les aérosols (COFERA).
- Mesbah B. (1994) Le S.M.E.C. (Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire). Théorie, Performances et Applications. Thèse de l'Université Paris XII.
- Metayer Y., Houlaki S. and Madelaine G. (1984) Charge distribution on submicronic aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *J. Aerosol Science*. **15**-3, 258-261.
- Mikhalkova O.A. and Poluektov P.P. (1996) Charge distribution on aerosol particles under photon irradiation. *J. Aerosol Science*. **27**, Suppl. 1, s435-s436.
- Mirme A. and Salm J. (1999) Concurrent study of aerosol particle size distribution and of air ions in urban air. *J. Aerosol Science*. **30**, Suppl. 1, s387-s388.
- Mohnen V.A. (1967) Investigation of the attachment of neutral and electrically charged emanation decay products to aerosols. Thesis translated by Stripp W.G. Harwell report AERE-Trans 1106.

- Mohnen V.A. (1974) Formation, nature, and mobility of ions of atmospheric importance. Proc 4<sup>th</sup> Int. Conf. Atmospheric Electricity, Garmisch-Partenkirchen.
- Morgan K.Z. and Turner J.E. (1967) *Principles of Radiation Protection*. Wiley ed., New York.
- Negin C.A. and Worku G. (1993) MicroShield v.4, verification and validation report part I, test plan and test results. Grove engineering, Inc.
- Neuilly M. et CETAMA (1998) *Modélisation et estimation des erreurs de mesure*. ed. Lavoisier, technique & documentation.
- Newton G. J., Raabe O.G., Yarwood R.L. and Kanapilly G.M. (1976) Generation of monodisperse aerosols of <sup>67</sup>Ga-labeled aluminosilicate and <sup>198</sup>Au-labeled gold spheres. In *Fine particles: aerosol generation, measurement, sampling and analysis*. Ed. by B.Y.H Liu.
- Newton G. J., Kanapilly G.M. and Boecker B.B. (1980) Radioactive labelling of aerosols: generation methods and characteristics. in *Generation of aerosols and facilities for exposure experiments*. ed. by K. Willeke, an Arbor Science Publisher.
- Nolan P.J. and Kennan E.L. (1949) Condensation nuclei from hot platinum: size, coagulation coefficient and charge-distribution. *Proceeding of the Royal Irish Academy*. **52A**, 171-190.
- Okuyama K., Kousaka. And Motouchi T. (1984) Condensational growth of ultrafine aerosol particles in a new particle size magnifier. *Aerosol Science and Technology*. **3**, 353-366.
- Pannetier R. (1982) *Vade-Mecum du technicien nucléaire*. Tome III, 2<sup>nd</sup> edition, S.C.F. du Bastet.
- Paugam J.Y. (1978) Etude des principaux paramètres électriques de l'air, sur un site côtier, en atmosphère peu polluée. Thèse de doctorat, Université de Bretagne Occidentale (Brest).
- Perrin M.L. (1976) Etude expérimentale et théorique de la coagulation d'aérosols produits par radiolyse. Thèse de 3<sup>o</sup> Cycle. Université Paris VI.
- Philips B.B. and Gunn R. (1954) Measurements of the electrification of spheres by moving ionized air. *J. of Meteorology*. **11**, 348-351.
- Phillips B.B., Allee P.A., Pales J.C. and Woessner R.H. (1955) An experimental analysis of the effect of air pollution on the conductivity and ion balance of the atmosphere. *J. of Geophysical Research*. **60-3**, 289-296.
- Pollak L.W. and Metnieks A.L. (1962) On the validity of the Boltzmann's distribution law for the charges of aerosol particles in electrical equilibrium. *Geofis. Pura. Appl*. **53**, 111-132.

- Poluektov P.P., Emets E.P. and Kascheev V.A. (1991) On steady-state distribution of aerosol particle electric charges. *J. Aerosol Science*. **22**, Suppl. 1, s237-s240.
- Porstendörfer J., Hussin A., Scheibel H.G. and Becker K.H. (1984) Bipolar diffusion charging of aerosol particles-II. Influence of the concentration ratio of the positive and negative ions on the charge distribution. *J. Aerosol Science*. **15**-1, 47-56.
- Porstendörfer J. and Mercer T.T. (1979) Influence of electric charge and humidity upon the diffusion coefficient of radon decay products. *Health Physics*. **37**, 191-199.
- Pourprix M. (1973) Un nouveau précipitateur électrostatique, application à l'étude de la charge des aérosols par diffusion d'ions bipolaires. Thèse de Docteur Ingénieur, Université Paris VI.
- Pourprix M. (1989) Capteur électrostatique de particules d'aérosols. Brevet français n° 89 08400, 23 juin 1989.
- Pui D.H.Y., Fruin S. and Mc Murry P.H. (1988) Unipolar diffusion charging of ultrafine aerosols. *Aerosol Science Technology*. **8**, 173-187.
- Quant F.R., Caldow R., Sem, G.J. and Addison T.J. (1992) Performance of condensation particle counters with three continuous-flow design. *J. Aerosol Science*. **23**, Suppl. 1, s405-s408.
- Raabe O.G. and Newton G.J. (1970) Development of techniques for generating monodisperse aerosols with the Fulwyler droplet generator. In *Fission Product Inhalation Program Annual Report, 1969-1970*, LF43. Lovelace Foundation for Medical Education and Research. Albuquerque. pp 13-17.
- Raabe O. G., Boyd H. A., Kanapilly G. M., Wilkinson C. J. and Newton G. J. (1975) Development and use of a system for routine production of monodisperse particles of  $^{238}\text{PuO}_2$  and evaluation of gamma emitting labels. *Health Physics*. **28**. 655-667.
- Rader D.J. and McMurry P.H. (1986) Application of the tandem differential mobility analyzer to studies of droplet growth or evaporation. *J. Aerosol Science*. **15**-5, 771-787.
- Rader D.J., Brockmann J.E., Grasser T.W. and Castenada J.N. (1998) Annular-beam laser for in situ particle sizing/velocimetry. *J. Aerosol Science*. **29**, Suppl. 1, s105-s106.
- Raes F., Janssens A. and Van Dingenen R. (1986) The role of ion-induced aerosol formation in the lower atmosphere. *J. Aerosol Science*. **17**, 466-470.
- Reed L.D., Jordan H. and Gieseke J.A. (1977) Charging of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. **8**, 457-463.
- Reischl G., John W. and Devor W. (1977) Uniform electrical charging of monodisperse aerosols. *J. Aerosol Science*. **8**, 55-65.



- Renoux A. (1961) Etude des petits et des gros ions radioactifs de l'air. Thèse de 3<sup>ème</sup> cycle, Université de Paris.
- Renoux A., Paugam J.Y. et Madelaine G. (1979) Principe de la mesure des principaux paramètres de l'électricité atmosphérique - Résultats expérimentaux en atmosphère maritime peu polluée. *Pollution Atmosphérique*. **84**, 297-302.
- Renoux A. et Boulaud D. (1998) *Les aérosols : Physique et Métrologie*. ed. Lavoisier, technique & documentation.
- Rogak S.N. and Flagan R.C. (1992) Bipolar diffusion charging of spheres and agglomerate aerosol particles. *J. Aerosol Science*. **23-7**, 693-710.
- Saunders C.J. and Brown R.C. (1998) Measurement of particle aerodynamic diameter and electrical mobility using laser doppler anemometry. *J. Aerosol Science*. **29**, Suppl. 1, s447-s448.
- Scalf M., Westphall M.S., Krause J., Kaufmann S.L. and Smith L.M. (1999) Controlling charge states of large ions. *Science*. **283**, 194-197.
- Scheibel H.G., Hussin A. and Porstendörfer J. (1984) Application of new charge distribution data in the particle size analysis of ultrafine aerosol particles ( $30 \text{ nm} > d > 1 \text{ nm}$ ) with the differential mobility method (DDM). *J. Aerosol Science*. **15-3**, 372-376.
- Spurny K.R. and Lodge J.P. (1968) Radioactively labelled aerosols. *Atmospheric Environment*. **2**, 429-440.
- Suprun N.N., Stepchenkov V.I., Levasheva V.N., Kirichenko V.N. and Petryanov-Sokolov I.V. (1976) Experimental investigation of the charging of beta-active hot aerosol particles in a turbulent flow. *Soviet Physics Doklady*. **21-4**, 230-232.
- Szende G. and Udvarhelyi K. (1975) Production and labelling of monodisperse polystyrene and polystyrene-vinyltoluene copolymer latexes. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*. **26**, 53-56.
- Tammet H.F. (1967) *The aspiration method for the determination of atmospheric-ion spectra*. Translated from Russian, Israel program for scientific translations.
- Tammet H. (1995) Size and mobility of nanometer particles, clusters and ions. *J. Aerosol Science*. **26**, 459-475.
- Tymen G. et Renoux A. (1977) Calcul des coefficients de fixation des petits ions positifs en atmosphère bipolaire symétrique. *Chemosphere*. **7**, 393-400.
- Ungethüm E. (1974) The mobilities of small ions in the atmosphere and their relationship. *J. Aerosol Science*. **5**, 25-37.

- Vercoulen P.H.W., Roos R.A., Marijnissen J.C.M. and Scarlett B. (1991) An instrument for measuring electric charge on individual aerosol particles. *J. Aerosol science*. **22** suppl. 1, s335-s338.
- Wells P.V. and Gerke R.H. (1919) An oscillation method for measuring the size of ultramicroscopic particles. *J. Am. Chem. Soc.* **41**, 312-329.
- Wen H.Y., Reischl G.P. and Kasper G. (1984) Bipolar diffusion charging of fibrous aerosol particles-I. Charging theory. *J. Aerosol Science*. **15-2**, 89-101.
- Wen H.Y. and Kasper G. (1986) Counting efficiencies of six commercial particle counters. *J. Aerosol Science*. **17**, 947-961.
- Whitby K.T. (1961) Generator for producing high concentrations of small ions. *The review of scientific instruments*. **32-12**, 1351-1355.
- Whitby K.T. and Clark W.E. (1966) Electrical aerosol particle counting and size distribution measuring system for the 0.015 to 1  $\mu$  size range. *Tellus XVIII-2*, 573-586.
- Whitby K.T. and Liu B.H.Y. (1966) The electrical behaviour of aerosols. In *Aerosol Science* edited by C.N. Davies, Academic Press.
- Whitby K.T. (1976) Electrical measurement of aerosols. In *Fine particles: aerosol generation, measurement, sampling and analysis*. Ed. by B.Y.H Liu.
- Wiedensohler A. (1988) An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range. *J. Aerosol Science*. **19-3**, 387-389.
- Willeke K. and Baron P. A. (1993) *Aerosol Measurement, Principles Techniques and Applications*. Ed. By Willeke and Baron.
- Williams M.M.R. and Loyalka S.K. (1991) *Aerosol science theory and practice*. Pergamon Press.
- Woessner R.H. and Gunn R. (1956) Measurement related to the fundamental processes of aerosol electrification. *J of Colloid Science*. **11**, 69-76.
- Yeh H.C. (1976) A theoretical study of electrical discharging of self-charging aerosols. *J. Aerosol Science*. **7**, 343-349.
- Yeh H.C., Newton G.J., Raabe O.G. and Boor D.R. (1976) Self-charging of <sup>198</sup>Au-labeled monodisperse gold aerosols studied with a miniature electrical mobility spectrometer. *J. Aerosol Science*. **7**, 245-253.
- Yeh H.C., Newton G.J., Raabe O.G. and Boor D.B. (1978) Charge distribution on plutonium-containing aerosols produced in mixed-oxide reactor fuel fabrication and the laboratory. *Health Physics*. **35**, 500-503.
- Zamorani E. and Ottobrini G. (1978) Aerosol particle neutralization to Boltzmann's equilibrium by a.c. corona discharge. *J. Aerosol Science*. **9**, 31-39.