

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

Développement d'un chargeur à décharge couronne pour la mesure à 10 Hz de la concentration d'aérosol atmosphérique

Assia BOUAROURI
Décembre 2014
ISRN/IRSN/2015-180

Laboratoire de physique et de métrologie des aérosols

UNIVERSITÉ PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE 288 :
ONDES ET MATIÈRE

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas

THÈSE DE DOCTORAT

Physique

par

Assia BOUAROURI

**Développement d'un chargeur à décharge couronne
pour la mesure à 10 Hz de la concentration d'aérosol
atmosphérique**

Date de soutenance : 12/12/2014

Devant le jury composé de :

M. Lucien DASCALESCU, Pr. Professeur à l'Université de Poitiers	Rapporteur
M. Alfred WEBER, Pr. Professeur à l'Université de Clausthal	Rapporteur
M. Frédéric BOUILLAUT, Pr. Professeur à l'Université Paris Sud	Examineur
M. François GENSDARMES, Dr Chef de laboratoire à l'IRSN	Examineur
M. Denis BOULAUD, Dr. Directeur adjoint à l'IRSN	Invité
M. Jean-Pascal BORRA, Dr. Directeur de recherche au CNRS	Directeur de thèse

REMERCIEMENTS

Ces travaux de thèse ont été effectués au sein de l'Equipe Décharges Electriques et Aérosols du Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (LPGP). Je remercie Monsieur Gilles Maynard, Directeur du Laboratoire, de m'avoir accueillie au sein de cette unité de recherche.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Monsieur Lucien Doru Dascalescu, Professeur à l'Université de Poitiers et à Monsieur Alfred Weber, Professeur à l'Institut für Mechanische Verfahrenstechnik de Clausthal, pour avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse.

Je remercie Monsieur Frédéric Bouillaut, professeur de l'université de paris sud pour m'avoir fait l'honneur de participer à ce jury de thèse. Je tiens aussi à remercier M. Denis Boulaud directeur adjoint à l'IRSN et Monsieur François Gensdarmes chef du laboratoire de physique et métrologie de l'IRSN d'avoir accepté de faire partie de ce jury et pour les discussions scientifiques au cours de cette étude.

Je remercie mon encadrement au LPGP M. Nicolas Jidenko et tout particulièrement Monsieur Jean-Pascal Borra, pour sa rigueur scientifique et ses conseils qui m'ont permis de progresser et de mener à bien ce travail et qui depuis le début m'a aidé, orienté et soutenu jusqu'à l'achèvement de la rédaction du document.

Mes remerciements s'adressent également à l'IRSN pour avoir cofinancé cette étude.

Je remercie les personnes que j'ai eu le plaisir de côtoyer au laboratoire et à Supélec Rémi, Leïla, Sabrina, Zeïna, Myassa, Azza...

Un grand Merci à Madame Dalila Namane enseignante à l'Ecole Polytechnique d'Alger pour m'avoir donné goût à la recherche scientifique.

Merci à toi Nacer pour m'avoir toujours soutenu et encouragé et pour ta grande patience

Je remercie ma sœur Abba pour son aide durant ses trois années de thèse et pour sa grande disponibilité.

Enfin, je ne saurais jamais remercier assez mes parents qui ont tout donné pour voir leurs enfants épanouis. Je dédie cette thèse à toi seul Papa.

TABLE DES MATIERES

REMERCIEMENTS	1
TABLE DES MATIERES	2
LISTE DES FIGURES.....	7
LISTE DES TABLEAUX.....	14
LISTE DES SYMBOLES	15
INTRODUCTION GENERALE	19
I. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE	23
I.1. Introduction.....	23
I.2. Les décharges électriques dans l'air à pression atmosphérique.....	23
I.2.1. Généralités sur les plasmas	23
I.2.2. Les décharges pré-disruptives.....	27
I.2.2.1. Mécanismes de formation des décharges.....	27
I.2.2.2. Topographie du champ électrique géométrique.....	30
I.2.2.3. Influence de la charge d'espace	31
I.2.2.4. Décharge pré-disruptive négatives.....	32
I.2.3. Ions produits par une décharge pré-disruptive dans l'air à pression atmosphérique.....	35
I.2.3.1. Propriétés.....	35
I.2.3.2. Répartition dans l'espace inter-électrodes	37
I.2.3.3. Pertes d'ions aux parois par effet des répulsions électrostatiques	39
I.3. Aérosols	40
I.3.1. Définition	40
I.3.2. Mécanisme de formation des aérosols	40
I.3.3. Croissance de l'aérosol	41
I.3.4. Propriétés des aérosols	41
I.3.4.1. Diamètre.....	41

I.3.4.2.	Concentration	42
I.3.5.	Nombres adimensionnels en physique des aérosols	42
I.3.6.	Mesures granulométriques d'aérosol	44
I.3.6.1.	Caractéristiques des instruments de mesures	44
I.3.6.2.	Méthodes de mesures	45
I.3.6.3.	Instruments de mesure granulométriques d'aérosols	52
I.3.7.	Charge de l'aérosol	58
I.3.7.1.	Charge par champ	59
I.3.7.2.	Charge par diffusion.....	60
I.3.7.3.	Distribution de charge pour un aérosol monodispersé.....	64
I.3.7.4.	Notions de charge intrinsèque, charge extrinsèque et charge partielle	66
I.3.8.	Chargeurs par diffusion unipolaires	67
I.3.8.1.	Chargeur à décharge couronne -fil.....	67
I.3.8.2.	Chargeurs à décharge couronne –pointes.....	71
I.3.8.3.	Comparaison des chargeurs.....	76
I.4.	Conclusions bibliographiques	77
II.	STRATEGIE DE L'ETUDE.....	79
II.1.	Principe	79
II.2.	Contraintes métrologiques	80
II.2.1.	Mesure de concentration à 10 Hz : fréquence d'échantillonnage et temps de réponse	80
II.2.2.	Limite de détection en concentration	80
II.2.3.	Séparation mobilimétrique des différentes gammes de taille pour l'inversion de données	81
II.3.	Transport EHD des ions → optimisation du chargeur pour la « granulométrie »	82
II.3.1.	Transport EHD des ions de la décharge couronne → source d'ions.....	83
II.3.2.	Etude et optimisation des conditions de charge (N_i, t) selon le mélange ions-aérosol	84
II.3.3.	Caractérisation du chargeur retenu	85
II.3.4.	Test de faisabilité des mesures de concentration à 10 Hz.....	85
III.	MATERIEL ET METHODES.....	87
III.1.	Introduction.....	87
III.2.	Dispositif expérimental.....	87
III.3.	Conditionnement de gaz.....	89

III.4.	Génération d'aérosol calibré	89
III.4.1.	Production d'aérosol monodispersé	89
III.4.2.	Système de dilution et stabilité temporelle de l'aérosol	91
III.5.	Mesures aérosol.....	93
III.5.1.	Concentration et distribution en taille	93
III.5.2.	Evaluation de la charge moyenne	93
III.5.3.	Mesure des distributions de charge	97
III.6.	Caractérisation de la source d'ions	98
III.6.1.	Décharge électrique.....	98
III.6.2.	Evaluation du profil de densité ionique au plan.....	100
III.6.3.	Mesure du courant d'ions à l'entrée du chargeur $I_{mélange}$	101
III.6.4.	Prototype développé.....	104
III.7.	Mesure du temps de réponse	104
III.8.	Conclusions	106
IV.	SOURCES D'IONS	107
IV.1.	Introduction.....	107
IV.2.	Décharge électrique.....	107
IV.2.1.	Etude paramétrique de la décharge pointe-plan	108
IV.2.1.1.	Polarité négative.....	108
IV.2.1.2.	Tension de décharge.....	109
IV.2.1.3.	Distance inter-électrodes et rayon de courbure	111
IV.2.1.4.	Distances aux parois.....	113
IV.2.2.	Influence du flux de gaz sur la décharge.....	114
IV.2.2.1.	Sur le courant de décharge	114
IV.2.2.2.	Sur la distribution de la densité du courant ionique au plan	115
IV.2.2.3.	Evaluation du courant entrant dans l'extracteur : $I_{extracteur}$	118
IV.3.	Extraction d'ions	120
IV.3.1.	Phénoménologie.....	121
IV.3.2.	Caractérisation de l'extracteur métallique	123
IV.3.3.	Etude de l'extraction : extracteur métal-isolant-métal	125
IV.3.3.1.	Géométrie de l'extracteur → courant entrant et pertes	126
IV.3.3.2.	Extraction à géométrie fixée selon les temps caractéristiques	130
IV.3.3.3.	Choix des paramètres d'extraction.....	137
IV.4.	Conclusions	137

V.	ETUDE DU MELANGE IONS-AEROSOLS	139
V.1.	Introduction	139
V.2.	Problématique scientifique de la charge dans une densité d'ions hétérogène	140
V.3.	Etude préliminaire : mélange ions-aérosol perpendiculaire non axi-symétrique.....	141
V.3.1.	Produit $N_{i,t}$ moyen et charge des particules selon la position d'injection	142
V.3.1.1.	Approche théorique simplifiée	142
V.3.1.2.	Confirmation expérimentale.....	144
V.3.2.	Conséquences de la dissymétrie du mélange ions-aérosol.....	145
V.3.2.1.	Sur la relation charge diamètre	146
V.3.2.2.	Sur la charge moyenne selon la concentration d'aérosol monodispersé.....	147
V.4.	Choix des configurations de mélange axi-symétriques et courant d'ions.....	148
V.4.1.1.	Configurations de mélange testées.....	148
V.4.1.2.	Répartition du courant $I_{mélange}$ sans injecteur d'aérosol.....	150
V.4.1.3.	Modification du courant d'ions entrant dans le chargeur par injection d'aérosol	152
V.5.	Charge moyenne par particule dans les mélanges axisymétriques	154
V.5.1.	Conditions d'étude et loi théorique de référence	155
V.5.2.	Phénoménologie : charge moyenne selon $I_{mélange}$	156
V.5.3.	Temps de charge	157
V.5.4.	Profil de densité d'ions	159
V.5.4.1.	Contrôlé par le champ de Laplace dans le chargeur	159
V.5.4.2.	Champ surfacique créé par le PTPE : présentation de l'hypothèse n°2.....	160
V.5.5.	Trajectoire de la particule selon son diamètre	162
V.5.5.1.	Présentation des résultats	162
V.5.5.2.	Analyse phénoménologique	163
V.5.6.	Position d'injection d'aérosol : profil de densité d'ions et trajectoire	165
V.5.7.	Chargeur concentrique à extracteur métallique	167
V.6.	Conclusions.....	169
VI.	TEST DE L'INSTRUMENT : caractérisation du chargeur et du séparateur	171
VI.1.	Introduction.....	171
VI.2.	Choix et caractérisation du chargeur retenu.....	171
VI.2.1.	Choix du chargeur.....	171
VI.2.1.1.	Contraintes métrologiques → Critères de choix du chargeur	171
VI.2.1.2.	Comparaison des chargeurs.....	176

VI.2.1.3. Chargeur retenu	179
VI.2.2. Caractérisation du chargeur retenu	180
VI.2.2.1. Remarques préliminaire sur la charge initiale de l'aérosol.....	180
VI.2.2.2. Relation entre le courant d'aérosol chargé et la concentration initiale	181
VI.2.2.3. Charge et distribution de charge selon le diamètre pour deux conditions de charge	182
VI.2.2.4. Relation mobilité moyenne-diamètre et enveloppe.....	185
VI.3. Faisabilité de l'instrument.....	186
VI.3.1. Dimensionnement du séparateur	186
VI.3.2. Caractérisation du séparateur et de l'instrument.....	188
VI.3.2.1. Limite de détection en concentration	188
VI.3.2.2. Mesure à 10 Hz : temps de réponse < 100 ms	189
VI.3.2.3. Pouvoir de séparation	191
VI.4. Conclusions et améliorations	193
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	195
REFERENCES.....	201
ANNEXE 1 : PRINCIPE DU "DIFFERENTIAL MOBILITY ANALYZER" (DMA).....	208
ANNEXE 2 : PRESENTATION DU COMPTEUR A NOYAUX DE CONDENSATION	210
ANNEXE 3: PRESENTATION DU "PARTICLE COUNTER SIZER" (PCS)	212
ANNEXE 4 : PRINCIPE DU GENERATEUR SINCLAIR -LA MER (SLG).....	214
ANNEXE 5 :CALIBRATION DES APPAREILS DE MESURE DE CONCENTRATION	217
ANNEXE 6 : PRELEVEMENT AEROSOL.....	220
ANNEXE 7: DIMENSIONNEMENT DU PIEGE A IONS.....	223
ANNEXE 8 : CONFINEMENT EHD DES IONS DANS LA DECHARGE	225

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : différenciation des plasmas selon l'énergie $kBTe$ et la densité n_e des électrons	25
Figure 2 : topographie de la décharge couronne en configuration pointe positive-plan	29
Figure 3 : décharge fil-cylindre négative	30
Figure 4 : décharge pointe-plan négative	31
Figure 5 : a) accumulation de charge dans une géométrie pointe négative-plan. b) distorsion du champ due à la charge d'espace [KUF-84]	32
Figure 6 : caractéristique I-V pour une décharge pré-disruptive négative et régimes de décharge (air ambiant et à pression atmosphérique 1020 mbar et à température ambiante 25°C)	34
Figure 7 : évolution de la distribution de la mobilité des ions négatifs (a) et positifs (b) produit par ^{241}Am selon leur âge [ALO-09]	36
Figure 8 : schéma descriptif de la répartition de la densité du courant ionique au plan	38
Figure 9 : comparaison entre le profil de densité du courant ionique de Warburg et Sigmond au plan pour une décharge négative pointe-plan ($d_{gap}=13$ mm).....	39
Figure 10 : écoulement autour d'une sphère. (a) écoulement laminaire, $Re_p \approx 0,1$. (b) écoulement turbulent, $Re_p \approx 2$. (c) écoulement turbulent, $Re_p \approx 250$. [HIN-82]	43
Figure 11 : schéma du système de collection par filtration.....	46
Figure 12 : schéma de principe d'un étage impacteur.....	47
Figure 13 : schéma de principe de mesure d'un compteur optique.....	49
Figure 14 : analyseur de mobilité d'ordre (a) zéro et (b) d'ordre 1	51
Figure 15 : analyseur de mobilité électrique d'ordre 2 (ou ADME).....	51
Figure 16 : schéma représentatif du SMPS [BIS-04] ₁	53
Figure 17 : schéma représentatif de l'EAA [BIS-04] ₁	54
Figure 18 : schéma représentatif de l'EAS [TAM-98].....	54
Figure 19 : schéma représentatif du FAS [GRA-01].....	55
Figure 20 : schéma représentatif du DMS [BIS-04] ₂	56
Figure 21 : lignes de champ électrique au voisinage d'une particule. A : $n_p=0$; B : $n_p < n_s$; C : $n_p = n_s$; D : définition de l'angle limite θ_0	59

Figure 22 : charge par diffusion : Nombre de charges en fonction de $N_i.t$ pour différents diamètres calculé avec la loi de White	62
Figure 23 : evolution temporelle du nombre de charge moyen par particule monodispersé pour une densité d'ions de 10^6 cm^{-3} : Simulation Monte-Carlo (symboles ouverts) Fuchs continuum (pointillés) et régime de transition (lignes pleines) [BIS-04].....	64
Figure 24 : comparaison des niveaux de charge selon le diamètre, calculés à partir des lois de White Fuchs dans les régimes continus et de transition.....	64
Figure 25 : schéma du chargeur de Hewitt (Hewitt 1957) [INT-09]	68
Figure 26 : schéma du double chargeur de Hewitt (Kruis et Fissan)[KRU-01].....	68
Figure 27 : schéma des chargeurs de (a) Lui (Liu, Intra 2009), (b) Liu et Pui [INT-11].....	69
Figure 28 : schéma du chargeur de Buscher [BUS-80].....	70
Figure 29 : schéma du chargeur de Biskos et de la distribution des $N_i.t$ selon la position d'injection [BIS-04]	71
Figure 30 : schéma du chargeur de Whitby [WHI-61].....	72
Figure 31: schéma du chargeur de Medved [MED-00].....	72
Figure 32 : schéma du double chargeur pointes a) Chargeur Twin Corona b) EAN 581 nébuliseurs.....	73
Figure 33 : schéma du chargeur multi canaux [PAR-07].....	73
Figure 34 : schéma chargeur post-corona unipolaire [UNG-01].....	74
Figure 35 : schéma du chargeur à ioniseur en fibre de carbone de Han [HAN-08].....	74
Figure 36 : schéma du chargeur de Li [LI-11]	76
Figure 37 : schéma de principe de mesure et des moyens mis en œuvre.....	79
Figure 38: schéma synoptique du dispositif expérimental	88
Figure 39: granulométrie (a) en sortie du four pour différentes température (b) en sortie du DMA.....	90
Figure 40 : distributions granulométriques en sortie de SLG mesurées au DMA pour $T_{\text{saturateur}} = 140$ et 150 °C	90
Figure 41 : système de dilution "maison" développé pour l'étude de la charge	91
Figure 42 : suivis temporels de la concentration d'aérosol contrôlée par le débit de dilution de $30,3 \text{ L.min}^{-1}$ à $28,3 \text{ L.min}^{-1}$	92
Figure 43 : photo de dessus de l'ogive polarisée et du cylindre de masse du piège à ions développé	94
Figure 44 : relation entre la tension théorique de collection à 100% et la mobilité électrique	94

Figure 45 : évolution du courant d'ions mesuré en sortie du piège à ions selon la tension ($I_d=50 \mu A$).....	95
Figure 46 : schéma descriptif du protocole développé pour l'évaluation des pertes dans le chargeur.....	96
Figure 47 : schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation du chargeur	97
Figure 48 : évolution du courant de particules chargées mesuré avec un électromètre en sortie du DMA radial pour des particules de 100 nm (particules de NaCl produites par le four et présélectionnées avec le DMA cylindrique, on notera la présence de particules bi-chargées non désirées).....	98
Figure 49 : dispositif expérimental de caractérisation de la décharge en système ouvert.	99
Figure 50 : plan en anneau utilisé pour l'évaluation de $j(r)$ et schéma du dispositif expérimental utilisé pour la mesure des courants sur les anneaux.....	100
Figure 51: répartition du courant d'ions en sortie de l'extracteur.....	102
Figure 52 : allongement de la ligne de fuite de courant vers le plan zone de mélange.....	102
Figure 53 : influence de la position entre la grille et le plan sur l'extraction des ions ($R_c=80 \mu m$, $d_{gap}= 13 \text{ mm}$, $Q_{ions}= 5 \text{ L.min}^{-1}$, $D= 4 \text{ mm}$) (a) $I_{mélange}$ et (b) $I_{grille}/I_{mélange}$ selon la distance plan-grille	103
Figure 54 : prototype développé de l'ioniseur pointe-trou.....	104
Figure 55 : dispositif de mesure du temps de réponse	105
Figure 56 : (a) caractéristique $I-V$ ($d_{gap}= 13 \text{ mm}$; $R_c= 80 \mu m$; $P= 1020 \text{ mbar}$) (b) Oscillogramme de Trichel avec $R_{mes}=1 \text{ M}\Omega$ (c) sur $R_{mes}=50 \Omega$	110
Figure 57: régimes de fonctionnement de la décharge ($R_c=50\mu m$).....	111
Figure 58: influence du rayon de courbure sur le fonctionnement de décharge $d_{gap}=13 \text{ mm}$	112
Figure 59 : caractéristiques $I-V$ pour deux pressions ($P=1020$ et 1250 mbar).....	113
Figure 60 : évolution du courant de décharge en fonction du débit du gaz	114
Figure 61 : profils $j(r)$ pour différentes tensions en régimes Trichel et Couronne ($R_c= 60 \mu m$; $d_{gap}= 11,5 \text{ mm}$)	116
Figure 62 : influence du débit sur le profil de densité au plan ($R_c= 80 \mu m$; $d_{gap}= 13 \text{ mm}$, $D= 2 \text{ mm}$)	117
Figure 63 : dispositif utilisé pour évaluer le courant entrant dans l'extracteur	118
Figure 64 : estimation du courant $I_{extracteur}$ en présence du débit de gaz	119
Figure 65 : profil de densité de courant réaliste au dessus de l'extracteur.....	120

Figure 66 : répartition et trajectoires des ions dans les trois zones (décharge, extracteur et mélange).....	121
Figure 67 : courant d'ions mesuré à la grille I_{grille} pour un extracteur métallique d'épaisseur $h = 1$ mm et de diamètre $D = 2$ mm	124
Figure 68 : répartition d'ions de l'entrée de l'extracteur à la grille de mesure.....	125
Figure 69 : influence de la polarisation de surface de l'isolant sur l'injection des ions dans l'extracteur et les pertes d'ions aux parois	127
Figure 70 : représentation des lignes de champ créé par la polarisation des bords isolants de l'extracteur	128
Figure 71 : évolution du courant $I_{mélange}$ en fonction du diamètre d'extracteur pour différents courant de décharge. (a): à vitesse de gaz constante, (b) à débit constant	129
Figure 72 : (a) courant $I_{mélange}$ et (b) rapport $I_{mélange} / I_d$ en fonction du courant I_d	131
Figure 73 : évolution du (a) courant $I_{mélange}$ et (b) de la densité d'ions estimée N_i^0 en fonction du débit.....	132
Figure 74 : schéma du dispositif d'étude de l'effet de polarisation du plan sur l'extraction .	133
Figure 75: courant $I_{mélange}$ selon la tension de polarisation V_{pol}	133
Figure 76 : représentation du champ électrique créé par la polarisation du plan 1.....	134
Figure 77 : efficacité d'extraction en fonction du rapport $t_{transit}/t_{dérive}$ ($D= 2$ mm, $Q_{ions} \in [5 - 30]$ L.min ⁻¹ et $I_d \in [10-150]$ μ A)	136
Figure 78 : efficacité d'extraction en fonction du rapport $t_{transit}/t_{dérive}$ ($D=1$ et 4 mm et $I_d \in [10-150]$ μ A).....	137
Figure 79: présentation schématique du rétrocontrôle de la charge d'espace et de la charge de l'aérosol.....	140
Figure 80: illustration de l'injection de l'aérosol pour l'approche théorique simplifiée	142
Figure 81: (a) densité d'ions et (b) produit $N_i.t$ pour différentes densités d'ions initiale N_i^0	143
Figure 82: évolution du nombre de charge selon le diamètre pour différents $N_i.t$ relatifs à la position d'injection pour $N_i^0 = 10^{10}$ cm ⁻³	144
Figure 83: schéma du dispositif expérimental employé pour l'étude de l'effet de la position d'injection sur la charge de l'aérosol.	145
Figure 84: évolution du nombre moyen de charge par particule et du produit $N_i.t$ selon la position d'injection.....	145

Figure 85: a) géométrie du mélange ion-aérosol perpendiculaire dissymétrique avec b) un zoom du mélange où les lignes de champ de Laplace et les trajectoires de deux particules de tailles différentes	146
Figure 86: relation charge-diamètre pour un mélange ions-aérosol perpendiculaire dissymétrique à $I_{mélange}$ constant de 250 nA	147
Figure 87: nombre moyen de charge par particule de 100 nm selon la concentration de l'aérosol.....	148
Figure 88: schéma des deux configurations de mélange ions-aérosols étudiées.....	149
Figure 89: redistribution du courant en sortie de l'extracteur	151
Figure 90 : courant I_{grille} en fonction du courant I_d pour différents diamètres de l'extracteur ($D=1, 2$ et 4 mm ; $Q_{ions}=5$ L.min ⁻¹).	151
Figure 91 : effet de la position d'injecteur d'aérosol sur $I_{mélange}$ en configuration de mélange ion-aérosols (a) concentrique et (b) face-à-face, selon le courant de décharge	153
Figure 92 : répartition du courant en zone de mélange (a) concentrique (b) face-à-face	154
Figure 93 : nombre moyen de charges par particule ($d_p=460$ nm) selon le courant $I_{mélange}$ dans les deux configurations (a) concentrique $e_{inj.}=D_{inj.}=3$ mm, (b) face-à-face $l_{inj.}=14$ mm.	156
Figure 94: nombre moyen de charge par particule pour deux temps de charge en configuration face-à-face ($l_{inj.}=8$ mm)	157
Figure 95 : influence du temps de charge sur le nombre moyen de charge par particule q_p ..	158
Figure 96: (a) charges moyennes mesurées avec et sans écran pour trois positions du piège à ion (3, 9, 13,5 mm) et (b) rapport des charges moyennes mesurées avec et sans écran sur le piège à ion	160
Figure 97 : descriptif de la charge de l'aérosol pour deux courants de décharge différents : profil de densité d'ions et trajectoire d'une particule (a) dans l'espace (b) sur les axes z parallèles à l'axe de symétrie (c) évolution temporelle de la densité d'ions sur la trajectoire d'une particule.....	161
Figure 98 : relation charge-diamètre (théorie & expérience) $I_d=30$ μ A, $I_{mélange}=350$ nA, $l_{inj.}=8$ mm.....	162
Figure 99: produit $Ni.t$ pour des diamètres $d_p=460$ et 820 nm selon $I_{mélange}$ dans la configuration concentrique ($e_{inj.}=5$ mm, $D_{inj.}=3$ mm) et: face-à-face : $l_{inj.}=8$ mm.....	163
Figure 100: influence de la dynamique de charge sur la trajectoire d'aérosol de taille différente (460 nm et 820 nm) (a) trajectoire des aérosols sans ions, (b) trajectoire avec ions (c) profil de Ni le long de la trajectoire d'un aérosol et dans le temps.....	164

Figure 101: charge de l'aérosol en fonction la position d'injection (face-à-face)	166
Figure 102: descriptif du profil de densité d'ions dans la configuration concentrique et trajectoire d'une particule dans le plan Ni-z	168
Figure 103: évolution du nombre moyen de charge q_p en fonction du courant $I_{mélange}$	168
Figure 104: critères de sélection des chargeurs.....	172
Figure 105: relations mobilité moyenne-diamètre théoriques pour différents produits $N_i.t$ évalués à partir de la loi de Fuchs dans le régime de transition	174
Figure 106 : relation mobilité électrique-diamètre en tenant en compte la distribution de charge pour un $N_i.t$ moyen de 5.10^6 s.cm ⁻³	175
Figure 107: influence de l'état de charge initiale sur la charge des particules de 92 nm	180
Figure 108: évolution du courant d'électromètre ($Q_{électromètre}=5$ L.min ⁻¹) en fonction de la concentration d'aérosol en entrée mesurée au CNC	181
Figure 109: relation charge diamètre pour un courant de décharge de 10 et de 110 μ A	182
Figure 110: (a) distribution de mobilité et (b) distribution de charge d'un aérosol de 92 nm	184
Figure 111 : distributions de mobilités, i.e. de charges représentées selon le diamètre électrique équivalent pour des particules de 600 nm neutralisées par une source ⁸⁵ Kr (décharge off) et chargées en sortie de chargeur (sans neutraliseur).	184
Figure 112 : relation mobilité moyenne-diamètre du chargeur retenu avec enveloppe induite par les distributions de charges	185
Figure 113: schéma du séparateur de mobilité électrique envisagé et cause d'incertitudes ..	186
Figure 114. schéma de principe du séparateur électrostatique.....	187
Figure 115: évolution du courant de particules chargées en réponse à des créneaux de concentration	190
Figure 116 : (a) évolution temporelle du courant de particules mesuré à l'ECF sur le deuxième plateau selon les conditions expérimentales et (b) Evolution du temps de réponse de l'instrument pour différents débits de sortie du séparateur prélevés dans l'ECF.....	190
Figure 117: efficacité de collection du premier plateau	191
Figure 118: distribution de charge des particules de 600 nm.....	192
Figure 119 : schéma de principe du DMA	208
Figure 120 : schéma de fonctionnement du CNC (source : documentation TSI)	210
Figure 121: schéma de principe du fonctionnement du PCS-2010.....	212
Figure 122 : diagramme de la condensation hétérogène	214

Figure 123: schéma de principe du SLG	216
Figure 124 : setup de comparaison des concentrations mesurée au CNC et à l'électromètre	217
Figure 125 : concentration mesurée au CNC en fonction de la concentration évaluée à l'électromètre et évaluation d'erreurs entre les deux instruments.....	218
Figure 126 : schéma de l'ESP pour le calcul de la tension critique à appliquer	223

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : valeurs des propriétés ioniques (mobilités et masses) utilisés dans la littérature..	36
Tableau 2 : caractéristiques des granulomètres aérosol	57
Tableau 3 : comparaison des conditions de fonctionnement des chargeurs par diffusion. * P= perpendiculaire, O= opposé, A= axial (Intra 2009)	77
Tableau 4 : diamètres modaux et écarts types géométriques en sortie du SLG et du four avec/sans DMA).....	91
Tableau 5 : comparaisons des chargeurs selon les critères de choix.....	178
Tableau 6 : charges moyennes pour des particules collectées sur chacun des deux plateaux (<100 nm et >100 nm) et limites de détection en concentration ($I_p=I_{BF}$) évaluées en référence au bruit de fond minimum théorique et mesuré sur le prototype	188

LISTE DES SYMBOLES

Lettres latines

B: mobilité dynamique
C: capacité électrique
Cc: facteur de Cunningham
 $\cos^m \theta$: loi de Warburg
 d_a : diamètre aérodynamique
 D_{canule} : diamètre de canule
 D_{chargeur} : diamètre du chargeur
 D_{extr} : diamètre extérieur
 d_{gap} : distance inter-électrodes
 D_{inj} : diamètre de l'injecteur
 d_{parois} : distance entre la pointe et les parois
e: charge unitaire
E: le champ électrique
 e_{inj} : position d'injection
 E_L : champ de Laplace
 E_r : champ électrique radial
 $E_z^{\sigma,2}$: composant axiale z du champ surfacique
 E_{σ} : champ de surface
 I_d : courant de décharge
 $I_{\text{extracteur}}$: courant dans l'extracteur
 I_p : courant de prticules chargées
 I_{pointe} : courant dans la pointe
 $J(r)$: densité de courant
 j_0 : densité du courant
 k_B : constante de boltzmann
 K_n : nombre de Knudsen
 L_{chargeur} : longueur du chargeur
 l_{inj} : position injection face à face
M: facteur de multiplication

N : densité du gaz
 n_e : Nombre d'électrons par unité de volume
 n_i : Nombre d'ions par unité de volume
 N_i^0 : densités d'ions initiales en entrée du chargeur
 n_o : Nombre d'espèces neutres par unité de volume
 $N_{p,n}$: concentration des particules dont le nombre de charge est "n"
 N_p : la concentration d'un aérosol atmosphérique
 P_i : pression partielle du gaz
 P_{Si} : pression de vapeur saturante
 q_p : nombre moyen de charges par la particule
 Q_A : débit d'aérosol
 Q_{ions} : débit d'ions
 Q_{total} : charge total
 R_c : rayon de courbure de la pointe
 Re_p : nombre de Reynolds
 $R_{protection}$: résistance de protection
 $R_{sonde\ HT}$: résistance de la sonde HT
 S_t : Nombre de stokes de la particule
 $t_{dérive}$: temps de dérive
 T_e : températures électroniques
 T_i : températures ioniques
 T_o : température des molécules neutres
 $t_{transit}$: temps de transit du gaz
 V : tension appliquée
 V_{alim} : tension de l'alimentation
 V_{gaz} : vitesse du gaz porteur d'ions
 V_{ion} : vitesse des ions
 V_p : vitesse des particules
 V_{pointe} : tension à la pointe
 V_{pol} : tension de polarisation
 V_s : tension seuil
 V_{TS} : vitesse de sédimentation

Lettres grecques

α : premier coefficient de Townsend
 α_i : degré d'ionisation du plasma
 β_n : coefficient d'attachement d'ions
 γ : second coefficient de Townsend
 ϵ_0 : permittivité du vide
 ϵ_{ex} : efficacité de charge extrinsèque
 ϵ_i : efficacité de charge intrinsèque
 ϕ : flux d'ions traversant une surface plane unitaire
 σ : charges surfaciques
 ρ : charge d'espace volumique
 τ : temps de relaxation de la particule
 μ_i : mobilité ionique
 η : coefficient d'attachement
 η_g : viscosité du gaz

Liste des abréviations

DMA: Differential Mobility Analyzer
CNC: Compteur de Noyaux de Condensation
EAD: Electrical Aerosol Detector
EAS: Electrical Aerosol Spectrometer
EEPS: Engine Exhaust Particle Sizer
ELPI: electrical low pressure impactor
FAS: fast aérosol spectrometer
MOUDI: micro-orifice uniform deposit impactor
PCS: Particle Counter Sizer
SMPS: Scanning Mobility Particle Sizer
SLG: générateur Sinclair-LaMer
WAA: Whitby Aérosol Analyser

INTRODUCTION GENERALE

Les aérosols, suspension de particules solides / liquides dans un gaz, sont des constituants majeurs de l'atmosphère. Ils suscitent un intérêt croissant pour les recherches. En effet, ils sont impliqués dans de nombreux processus naturels tels que la formation des nuages ou la modification du bilan radiatif de l'atmosphère [HIN-82]. Ils peuvent, cependant, être nocifs pour la santé, notamment à l'échelle submicronique. Enfin, l'avènement des nanotechnologies repose sur le contrôle de l'intensité des propriétés selon le diamètre des particules. Ainsi, de nouvelles instrumentations de mesures granulométriques voient le jour et visent à améliorer les performances en termes de sensibilité tant en concentration qu'en taille et de fréquence de mesure [WIL-92].

Le but de ce travail est de développer, pour l'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire), un système de mesure de concentration de l'aérosol sur deux gammes de tailles (< 100 nm et > 100 nm) dont le temps de réponse soit en deçà de 100 ms. En effet, pour évaluer les conséquences sur l'homme et sur l'environnement d'un rejet atmosphérique, il est nécessaire d'estimer la dispersion et le dépôt (humide et sec) de ces polluants. Cependant, le manque de données expérimentales de terrain liées à des mesures météorologiques précises, prenant en compte les turbulences, induit des incertitudes de plusieurs ordres de grandeur sur l'évaluation de la vitesse de dépôt sec. Cela est particulièrement critique pour les aérosols submicroniques. Pour cela, une méthode récemment développée est basée sur l'évaluation du flux de dépôt des aérosols atmosphériques par corrélation turbulente ("Eddy correlation", calculée par la covariance des fluctuations de la vitesse du vent et de la concentration d'aérosol [DAM-09]). Le flux de dépôt sec est la quantité de particules déposées par unité de surface et de temps ($\text{particules.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$). La vitesse de dépôt sec (m.s^{-1}) est alors obtenue en divisant le flux de dépôt par la concentration moyenne d'aérosol dans l'air (m^{-3}). Cependant, le temps de réponse des appareils de mesure de concentration d'aérosol sur plusieurs gammes de tailles est de l'ordre de la seconde ce qui permet d'appliquer la méthode à 10 mètres du sol, là où les temps caractéristiques des turbulences atmosphériques sont de l'ordre de la seconde ce qui limite la résolution de la méthode. De plus, la limite de sensibilité des instruments de mesure aérosols n'est pas compatible avec les concentrations d'aérosols atmosphériques qui varient typiquement de 10^3 à 10^5 cm^{-3} . Afin d'améliorer la résolution, des mesures à un mètre du sol sont requises et nécessitent des mesures de concentrations d'aérosol à 10 Hz.

Différentes techniques sont utilisées pour effectuer les mesures de distribution en taille d'un aérosol. Ces méthodes peuvent être classées essentiellement en méthodes optiques et électriques. Les méthodes optiques permettent de mesurer « en temps réel » des particules de tailles allant de 200 nm à 200 μm [WIL-92]. En deçà de 200 nm, une mesure optique est possible moyennant le grossissement de la taille par condensation hétérogène. Le temps nécessaires pour cette étape est de l'ordre de la seconde. Ainsi, seules les méthodes électriques sont compatibles avec les temps de réponse à atteindre dans la gamme de taille submicronique de l'aérosol atmosphérique à caractériser ici.

Le principe de détection électrique a donc été retenu pour cette étude. L'aérosol est d'abord chargé puis séparé selon la mobilité électrique pour remonter des mesures de courant par gamme de mobilité à la concentration d'aérosol par gamme de taille. Les décharges électriques, notamment les décharges couronne, sont utilisées pour produire les ions qui servent pour la charge de l'aérosol en raison de leur stabilité et de leur simplicité de mise en œuvre. Pour limiter les pertes de l'aérosol chargé et éviter la déstabilisation de la décharge par le dépôt d'aérosol sur les électrodes, les ions sont extraits de l'espace inter-électrodes. Les ions et les aérosols sont donc mélangés en aval de la décharge, pour charger l'aérosol par diffusion d'ions.

Pour atteindre un temps de réponse de 0,1 s, le temps de transit de l'aérosol dans le système de mesure doit être du même ordre afin de conserver l'information temporelle. Le courant de particules chargées doit être supérieur au bruit de fond de l'instrument de mesure. Ce courant est proportionnel au nombre de charges par particule q_p , à la concentration N_p et au débit d'aérosol Q_a ($I_p \propto q_p \cdot N_p \cdot Q_a$). De plus, le nombre de charges par particule q_p dépend essentiellement du produit $N_i \cdot t$ (N_i concentration moyenne des ions, cm^{-3}), t temps de charge (s)). Une double contrainte est à prendre en compte ici, une faible concentration de l'aérosol (10^3 à 10^5 cm^{-3}) et un temps de charge court ($t < 100 \text{ ms}$). Le chargeur d'aérosol doit donc être optimisé pour atteindre des niveaux de charge par particule et donc de courants de particule chargées supérieur aux limites de détection électrique (10 fA à 10 Hz pour l'électromètre Keithley 6514). Avant l'étude de la charge, la source d'ions doit être optimisée en termes de densité initiale en post-décharge pour compenser le temps de charge court. En effet, un produit $N_i \cdot t$ de 10^6 à $10^7 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ est utilisé dans la plupart des chargeurs d'aérosol submicronique à diffusion. Une densité moyenne d'ions d'environ 10^8 cm^{-3} est alors nécessaire. Toutefois, de telles densités d'ions unipolaires induisent des répulsions électrostatiques, qui engendrent des pertes importantes aux parois et donc une décroissance

rapide de la densité dans la zone de charge en post-décharge (10-100 ms). Une densité initiale plus élevée est alors nécessaire pour atteindre l'objectif de l'étude. *L'originalité de ce chargeur repose donc sur l'hétérogénéité des densités d'ions unipolaires ($N_i^0 > 10^9 \text{ cm}^{-3}$) requises pour compenser le temps de charge inférieurs à 50 ms.*

Un premier chapitre bibliographique vise à justifier la stratégie de l'étude. La première partie présente des généralités sur les décharges électriques, essentiellement sur les décharges corona. La seconde porte sur les aérosols, leur formation, leurs propriétés physiques et les différentes méthodes de mesure. Les mécanismes et lois de charge des aérosols ainsi que les différents chargeurs corona commerciaux sont ensuite présentés dans la troisième partie. Enfin, des notions sur les mélanges de jets d'ions et d'aérosols sont exposées.

Le second chapitre introduit la stratégie de l'étude.

Le chapitre III présente les conditions et les résultats de l'étude expérimentale. La première partie décrit la stratégie de l'étude. Sont ensuite présentés les dispositifs expérimentaux (conditionnement du gaz, caractérisation électriques de la décharge, des ions et aérosols chargés) ainsi que les protocoles développés pour garantir la fiabilité des résultats et la reproductibilité des mesures.

Le chapitre IV porte sur la caractérisation et l'optimisation de la source d'ions. La production d'ions doit être stable et le courant d'ions extrait de l'espace inter-électrode vers le chargeur, c'est-à-dire vers la zone de mélange en post-décharge, maximal. La stabilité de la source d'ions est critique pour garantir des relations charge et mobilité selon le diamètre constante, pour permettre de limiter les incertitudes lors de l'inversion de données et convertir le courant par gamme de mobilité en concentration par gamme de taille. Pour cela, différentes géométries de décharges pointe-trou sont étudiées pour définir les plages de fonctionnement de la décharge, comme source d'ions. Le confinement électro-hydrodynamique (EHD) des ions dans la décharge puis dans l'extracteur est caractérisé selon la géométrie de l'extracteur et le débit injecté dans la décharge, pour produire une densité maximale d'ions en post-décharge, c'est à-dire en entrée de chargeur.

Le chapitre V décrit l'étude de la charge dans différentes configurations de mélange ions-aérosols appelées « face-à-face » et « concentrique ». Une étude paramétrique menée en termes de charge maximales et pertes minimales selon les conditions de fonctionnement des deux configurations de mélange conduit au choix du chargeur retenu (source d'ion pointe-trou et mélange concentrique). Des aérosols monodispersés, utilisés comme "sonde", ont permis

d'évaluer le produit $N_i.t$ à partir du courant de particules chargées relatif au nombre moyen de charges par particule dans une densité d'ions hétérogène.

Le dernier chapitre VI présente la caractérisation du chargeur retenu (source d'ion pointe-trou et mélange concentrique) selon les caractéristiques d'aérosols (pour des diamètres de 10 à 820 nm et des concentrations jusqu'à 10^5 cm^{-3}). Les mesures de charge moyenne par particule et de distribution de charge permettent ici d'évaluer les produits $N_i.t$ moyens et les écarts de $N_i.t$, rencontrés par les particules le long de leurs trajectoires dans ces densités d'ion hétérogènes. Les relations charge et mobilité selon le diamètre et courant de particules chargées-concentration ainsi que les pertes d'aérosols dans le chargeur sont présentées.

Enfin, le séparateur électrostatique, dimensionné à partir de la relation mobilité-diamètre mesurée en aval du chargeur, est testé pour identifier les points critiques à améliorer. Le temps de réponse et le pouvoir de séparation en taille du système de mesure du courant de particules chargées selon la mobilité sont caractérisés avec des aérosols monodispersés.

I. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

I.1. Introduction

L'étude bibliographique permet de choisir et justifier la stratégie mise en place pour atteindre l'objectif de l'étude. Dans le cadre de ce travail, nous allons montrer que la détection électrique des aérosols est la méthode la mieux adaptée. Il est donc nécessaire de charger électriquement les aérosols avant les séparer en taille et mesurer le courant de particules chargées. Les décharges électriques sont classiquement utilisées pour produire les ions qui permettent de charger les aérosols.

Les décharges électriques dans l'air à pression atmosphérique font donc l'objet de la première partie bibliographique. Des généralités sur les plasmas sont d'abord abordées. L'intérêt est essentiellement porté sur les décharges électriques pré-disruptives notamment celles à polarité négative. Il s'agit de présenter l'intérêt de ces décharges pour la charge de l'aérosol par diffusion d'ions unipolaires en post-décharge et de définir les propriétés des ions.

Une deuxième partie concerne les aérosols et les mesures granulométriques ainsi que les mécanismes et les lois de charge. Après quelques généralités sur l'aérosol et ces propriétés, les différentes méthodes de mesures sont exposées, les avantages et les inconvénients de chacune sont présentés. Quelques instruments de mesures dont le principe s'appuie sur la charge des aérosols sont ensuite décrits. La détection électrique et la séparation électrostatique des aérosols requièrent la charge de l'aérosol. Enfin, quelques chargeurs par diffusion d'ions existants ainsi qu'une synthèse de leurs caractéristiques sont donnés.

I.2. Les décharges électriques dans l'air à pression atmosphérique

I.2.1. Généralités sur les plasmas

Le « plasma » est un gaz partiellement ou totalement ionisé, et dont les concentrations en électrons libres et en ions sont telles que le plasma est globalement neutre. Les plasmas constituent le « quatrième état de la matière ». En effet, ces derniers font suite, dans l'échelle de températures, aux solides, liquides et gaz. Les propriétés particulières des plasmas sont dues au long rayon d'action des forces coulombiennes entre les électrons et les ions. Cependant, du fait de leur faible densité, les plasmas conservent certaines propriétés des gaz non ionisés : grande compressibilité, énergie interne et pression proportionnelles à la température, écoulement de type fluide, etc.

Si n_e est le nombre d'électrons par unité de volume, n_i celui d'ions, et n_o celui des espèces neutres, on définit le degré d'ionisation du plasma par le rapport :

$$\alpha_i = \frac{n_e}{n_o + n_e}$$

On a en général $n_e = n_i$,

Le degré d'ionisation α_i varie en pratique de 10^{-10} jusqu'à 1. On sépare généralement les plasmas en deux grandes classes selon le degré d'ionisation, en prenant comme critère la nature des interactions régissant le plasma :

- Les gaz faiblement ionisés ($\alpha_i < 10^{-4}$) où les interactions dominantes sont les collisions électrons-neutres
- Les gaz fortement ionisés ($\alpha_i > 10^{-4}$) où les interactions dominantes sont les collisions électrons-électrons ou les collisions électrons-ions

On définit également les températures électroniques, ioniques et des molécules neutres : T_e , T_i et T_o par la condition que $(3k_B T_a / 2)$ est l'énergie cinétique moyenne des particules d'espèce a , dans le repère où celles-ci ont une vitesse moyenne nulle. Les valeurs de ces températures peuvent être très différentes les unes des autres, et permettent à nouveau de définir deux grandes classes de plasmas :

- Les plasmas thermiques sont en équilibre thermodynamique ($T_e \approx T_o$ et T_o assez élevée)
- Les plasmas froids qui sont hors équilibre thermodynamique, c'est-à-dire avec un gaz à température proche de la température ambiante, et des électrons au contraire assez énergétique ($T_e \gg T_o, T_i$).

Un plasma froid est faiblement ionisé. Les collisions électroniques qui se font avec les molécules neutres sont élastiques. Ces collisions n'échauffent que peu les molécules neutres.

On a typiquement

$$k_B T_e \approx 1-10 \text{ eV} \text{ et } k_B T_o = k_B T_i \approx 0,04-0,2 \text{ eV}$$

Neutralité macroscopique et densité de charges : Les plasmas sont différenciés par les conditions de champ électrique réduit (E/N , avec E le champ électrique et N la densité du gaz) qui gèrent la densité de charge n_e (cm^{-3}) et l'énergie des électrons $k_B T_e$ (J) (cf. Figure 1).

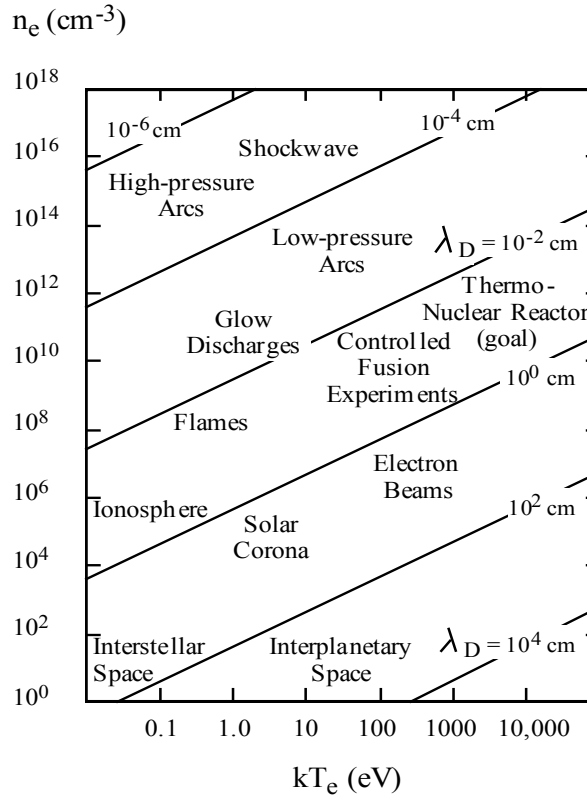


Figure 1 : différenciation des plasmas selon l'énergie $kBTe$ et la densité n_e des électrons pour différentes longueurs de Debye [HOL-74]

Les nombres de charges positives et négatives créées par les mécanismes d'ionisation sont sensiblement les mêmes dans le volume du plasma. Celui-ci est donc considéré comme neutre au niveau macroscopique. Cependant, la neutralité électrique est établie uniquement si la dimension du plasma est supérieure à la longueur de Debye. Celle-ci est définie comme étant la longueur à partir de laquelle le champ électrique coulombien, induit par une charge e , est neutralisé par un ensemble de charges de signe opposé (phénomène d'écrantage) et donc négligeable dans le volume environnant [NAS-71]. La longueur de Debye est définie par :

$$\lambda_D^2 = \frac{2 \varepsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}$$

Avec ε_0 la permittivité du vide ($F.m^{-1}$), n_e la densité électronique (cm^{-3}), k_B la constante de Boltzmann ($J.K^{-1}.molécule^{-1}$), et T_e la température électronique (K).

Les décharges couronnes à pression atmosphérique utilisées dans cette étude font partie des plasmas froids. L'énergie disponible au sein du plasma de décharge est donc en grande partie celle des électrons.

Mécanismes d'activation du gaz : les mécanismes qui conduisent à la formation d'un plasma, à partir d'un gaz initialement neutre sont l'ionisation et l'excitation du gaz. Les rayonnements

cosmiques, la radioactivité naturelle provoquent l'apparition de quelques électrons libres appelés électrons germes (en moyenne, 100 paires électron-ion par cm^3 , dans des conditions standards). Si on applique une différence de potentiel aux bornes d'un volume gazeux, un champ électrique est créé au sein du gaz, et l'énergie électrique injectée est transformée en énergie cinétique des particules chargées migrant jusqu'aux électrodes. Tant que le champ est faible, on ne fait qu'accélérer le mouvement de ces charges. Si la tension appliquée augmente (donc le champ électrique), les électrons, plus mobiles donc plus sensibles au champ électrique que les ions, peuvent acquérir une énergie cinétique suffisante pour donner lieu à des collisions, excitant ou ionisant les molécules de gaz. On distingue deux types de collisions [GOL-78] :

- les collisions *élastiques* (dans lesquelles il y a conservation de la quantité de mouvement) qui ne participent pas à l'activation du gaz. Les seuls effets de ces collisions sont des déviations de trajectoire et des transferts d'énergie cinétique sans changement d'énergie interne des molécules
- les collisions *inélastiques* dans lesquelles une partie (ou la totalité) de l'énergie cinétique de l'électron est transférée à la molécule sous forme d'énergie interne : on peut alors peupler un état excité (pour les molécules comportant 2 atomes ou plus, il existe aussi des états excités vibrationnels et rotationnels) de cette molécule, l'ioniser ou la dissocier. Pour cela, il faut que l'énergie de l'électron soit supérieure à l'énergie d'excitation, d'ionisation ou de dissociation de la molécule.

Une molécule dans son état fondamental peut, après une collision inélastique, aboutir dans différents états :

- *niveau excité* : un électron de la molécule a acquis de l'énergie, et celle-ci se retrouve dans un état excité (l'électron a une énergie plus grande qu'avant la collision). Ces niveaux excités sont pour la plupart radiatifs avec un temps de vie très court de l'ordre de 10^{-8} s. La molécule se désexcite alors en émettant un photon.
- *niveau métastable* : un électron de la molécule a acquis de l'énergie, mais cette fois il a abouti sur un niveau qui ne peut pas se désexciter de manière radiative (transition interdite). Le temps de vie de
- ces niveaux est généralement plus long que celui des niveaux radiatifs. Une molécule dans un état métastable se désexcite le plus souvent lors d'une collision.

- *molécule ionisée* : un électron de la molécule a acquis suffisamment d'énergie pour être arraché de celle-ci, et la molécule devient un ion chargé une fois. On peut, si les électrons libres du gaz sont assez énergétiques, ioniser plusieurs fois une molécule.
- *molécule dissociée* : la molécule peut être dissociée à la suite d'une collision avec un électron dont l'énergie cinétique est supérieure à l'énergie de liaison de la molécule.

I.2.2. Les décharges pré-disruptives

L'effet couronne présente l'ensemble des phénomènes liés à l'apparition d'une conductivité dans un gaz au voisinage d'un conducteur de faible rayon de courbure, porté à une tension suffisante [GOL-78].

Dans ce qui suit, le terme couronne ou corona est réservé au régime couronne et non pas aux décharges couronnes. Pour éviter toute confusion, les décharges couronnes sont désignées par le terme "décharges pré-disruptives".

Le principe des décharges pré-disruptives est similaire aux décharges électriques ayant lieu dans un champ uniforme à basse pression, car les mécanismes impliqués sont les mêmes. Cependant, dans une décharge pré-disruptive, l'une des électrodes possède un faible rayon de courbure ce qui crée un champ fortement dissymétrique dans le gap. La décharge est ainsi localisée dans la région à fort champ électrique c'est-à-dire l'électrode à faible rayon de courbure. La charge d'espace créée par l'ionisation permet de rétro-contrôler le champ à proximité de l'électrode active et donc le courant de décharge conduisant à un régime de décharge stable [LOE-65] [NAS-71]. Par conséquent, le passage à l'arc du gap a lieu après un enchaînement d'étapes sur une gamme de tension de la première avalanche électronique au claquage contrairement au cas du champ électrique uniforme pour lequel le passage à l'arc est quasi-instantané (de l'ordre de la microseconde). Cette gamme de tension dépend des paramètres du système, le paramètre critique qui contrôle réellement la décharge et le passage à l'arc est le champ réduit E/N : avec E le champ électrique (qui dépend de la tension, du rayon de courbure de l'électrode active et de la distance inter-électrodes) et N la densité du gaz (qui dépend de la pression et de la température). Par ailleurs, la nature du gaz affecte la valeur du champ réduit entraînant le claquage.

I.2.2.1. Mécanismes de formation des décharges

Le premier à avoir développé une théorie des décharges électriques est Townsend [TOW-14]. Cette théorie, présentée brièvement dans ce paragraphe, avait été développée pour des

décharges ayant lieu entre deux électrodes planes c'est-à-dire pour un champ uniforme. Elle permet d'introduire des mécanismes et processus fondamentaux pour la description physique des décharges. Cette théorie des décharges est basée sur deux processus :

- *La multiplication électronique par ionisation (ou avalanches électroniques) :* un électron libre suffisamment énergétique va créer une paire électron-ion dans le gaz. Le nouvel électron ainsi créé va à son tour être accéléré dans le champ électrique et créer une nouvelle paire électron-ion. A ce processus, on associe le premier coefficient de Townsend α , qui est la probabilité par unité de longueur dans la direction du champ pour un électron d'en créer un autre par collision ionisante. Ce coefficient α dépend de la nature du gaz, de la géométrie du système et du champ réduit E/N .
- *Les mécanismes secondaires d'extraction d'électrons par l'impact des ions sur la cathode :* un ion suffisamment énergétique peut, en arrivant sur la cathode, extraire un électron du matériau. À ce processus, on associe le second coefficient de Townsend γ , qui est la probabilité, pour un ion, d'extraire un électron sur la cathode. Ce coefficient γ dépend, comme le premier coefficient de Townsend, de la nature du gaz, de la géométrie du système et du champ réduit E/N . Mais il dépend également de la nature du matériau constituant la cathode.

Un électron formé dans le gaz peut également être capturé par une molécule neutre et former ainsi un ion négatif. Ce phénomène est fondamental pour la compréhension des décharges dans un gaz électronégatif tel que l'air. A ce processus d'attachement, on associe le *coefficient d'attachement* η , qui est la probabilité par unité de longueur dans la direction du champ pour un électron de se fixer sur une molécule neutre. Ce coefficient dépend également de la nature du gaz et de sa densité N .

Le nombre d'électrons dn créés par n_0 électrons initiaux sur une longueur dx est alors donné par :

$$dn = n(\alpha - \eta)dx \text{ soit } n = n_0 \exp(\int (\alpha - \eta)dx) = n_0 M$$

Où M est le facteur de multiplication.

Pour une décharge à champ non-uniforme l'espace inter-électrodes est découpé en deux zones. La Figure 2 illustre ce découpage pour un système pointe-plan.

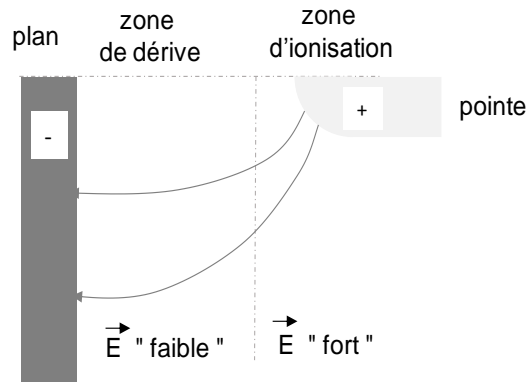


Figure 2 : topographie de la décharge couronne en configuration pointe positive-plan

- *Zone d'ionisation (zone de fort champ électrique)*, où le champ électrique à proximité de l'électrode active de faible rayon de courbure est supérieur au champ d'ionisation ($E > E_{ionisation} = 27 \text{ kV.m}^{-1}$, $\alpha > \eta$). Cette région est qualifiée de bipolaire puisqu'elle est le siège de production d'électrons et d'ions.
- *Zone de dérive (zone de « faible » champ électrique)*, où le champ électrique est inférieur au champ d'ionisation du gaz ($E < E_{ionisation} = 27 \text{ kV.m}^{-1}$). Cette zone est beaucoup plus grande que la précédente, dans laquelle le champ électrique, ne permet pas aux électrons de gagner assez d'énergie pour pouvoir ioniser le milieu ($\alpha < \eta$). Dans cette zone, les ions se déplacent le long des lignes de champ en réagissant entre eux et avec les autres composés du gaz.

Le processus d'ionisation à l'origine de la décharge est initié par l'existence de paires électrons libres-ions positifs créées par rayonnement cosmique ou par radioactivité naturelle. Lorsque ces électrons sont soumis à un champ électrique de l'ordre de 10^6 V.m^{-1} , l'énergie qu'ils acquièrent devient supérieure ou égale à l'énergie d'ionisation du gaz environnant. De nouvelles paires électrons-ions sont alors créées. Ces nouveaux électrons soumis au même champ vont également ioniser des molécules et créer de nouveaux électrons tant que le champ dans lequel ils se déplacent est suffisant : ce processus est appelé avalanche de Townsend.

Une décharge couronne proprement dite commence avec une avalanche électronique, cette avalanche doit être initiée par un électron. Le critère de Townsend pour une décharge autoentretenu est donné par :

$$\gamma[\exp \int (\alpha - \eta) dx - 1] = 1$$

Avec α et η coefficients d'ionisation et d'attachement et γ le coefficient d'ionisation secondaire.

Ces coefficients dépendent du champ réduit E/N en tout point sur la trajectoire de l'avalanche. Le champ en tout point de l'espace inter-électrodes étant la superposition de tous les champs quels que soient leurs origines. Or, la naissance d'un champ électrique peut avoir trois origines différentes :

- Potentiel appliqué sur les électrodes
- Charge d'espace volumique ρ
- Polarisation de surfaces isolantes (charges surfaciques σ)

I.2.2.2. Topographie du champ électrique géométrique

a. Fil-cylindre

Le champ électrique géométrique créé par une décharge fil-cylindre (cf. Figure 3) qui est dû à l'application d'une différence de potentiel et en l'absence d'ions gazeux dans l'espace inter-électrodes à une distance r (en mètre) de l'axe du fil est donné par :

$$E(r) = \frac{V}{r \text{Ln}(R_2/R_1)} \text{ V.m}^{-1}$$

Où V est le potentiel appliqué au fil (V), R_1 le rayon du fil (m) et R_2 le rayon du cylindre (m).

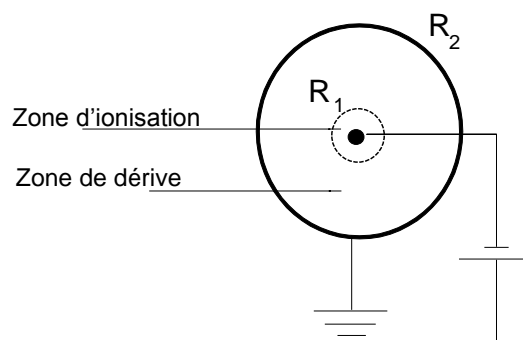


Figure 3 : décharge fil-cylindre négative

b. Pointe-plan

Le profil du champ électrique géométrique entre une pointe parabolicoïde et un plan, en l'absence de charge d'espace, dépend des caractéristiques électriques et géométriques de la pointe métallique. Il est décrit en fonction du potentiel imposé à l'électrode active le long de

l'axe de symétrie du système, en configuration pointe-plan par la formule de Hartmann [HAR-84]:

$$E(r) = \frac{2 V}{\left(r + \frac{R_c}{2}\right) \ln\left(\frac{2d_{gap} + R_c}{R_c}\right)}$$

Avec R_c le rayon de courbure de la pointe (en m), d_{gap} la distance inter-électrodes (en m), V le potentiel appliqué à la pointe (en V), r la distance par rapport à la pointe (en m).

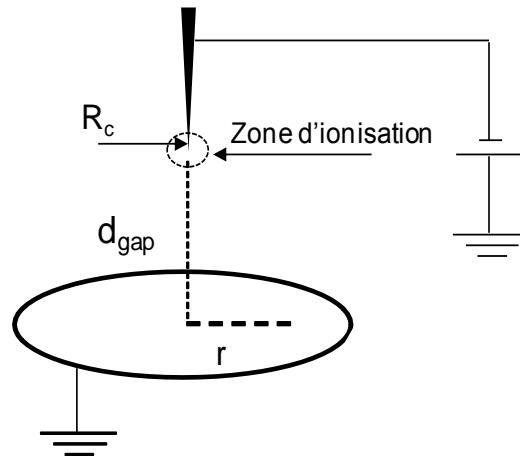


Figure 4 : décharge pointe-plan négative

Une décharge fil-cylindre permet de créer un volume plasma plus élevé qu'une décharge pointe-plan, ce qui donne un courant de décharge plus élevé [FRI-05]. Cependant, la densité d'ions n'est pas pour autant plus importante.

I.2.2.3. Influence de la charge d'espace

Dans les décharges pré-disruptive la charge d'espace créée par les ions qui dérivent produit un champ de charges d'espace qui est le facteur dominant qui contrôle le courant de décharge et la distribution de la densité ionique dans le gap [KUF-84].

A titre d'exemple, dans le cas d'une pointe négative, les ions positifs créés par ionisation sont purgés vers la pointe en dérivant à travers les lignes de champ. Les électrons sont repoussés vers les régions de faible champ électrique. En présence d'un gaz électronégatif (cas de l'air) les électrons s'attachent aux molécules électronégatives et des ions négatifs sont ainsi formés. Le champ est alors modifié dans le gap (cf. Figure 5).

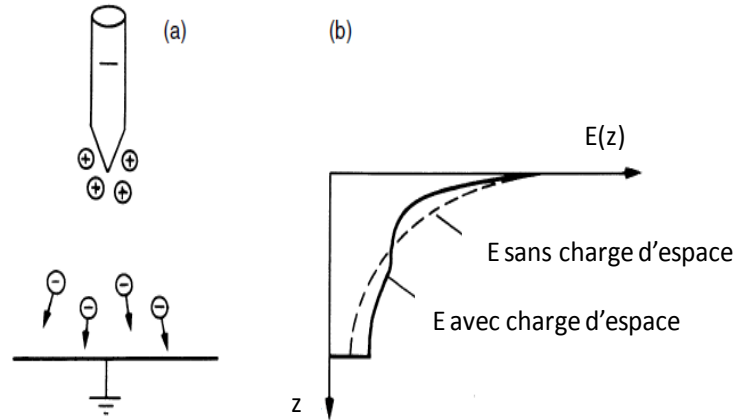


Figure 5 : a) accumulation de charge dans une géométrie pointe négative-plan. b) distorsion du champ due à la charge d'espace [KUF-84]

Le champ électrique est alors plus faible entre ces deux charges d'espace et renforcé près de la charge d'espace négative. Si le champ dans la région d'ionisation devient inférieur au champ nécessaire à l'ionisation, l'avalanche est alors interrompue. Le champ appliqué balaye ensuite les charges d'espace négatives et positives, le processus d'ionisation est ré-initié. Pour "vaincre" la réduction de champ due à la charge d'espace ionique sous la pointe, une tension plus élevée est requise.

I.2.2.4. Décharge pré-disruptive négatives

Une décharge pré-disruptive peut être positive ou négative, selon la polarité de l'électrode de faible rayon de courbure. Dans chacun des cas, la polarité des ions dans la zone de dérive est la même que celle de l'électrode active. Par conséquent, cette décharge peut être considérée comme une source d'ions dont la polarité est celle de l'électrode active.

En polarité négative, l'avalanche électronique se développe de l'électrode active vers l'extérieur ; elle s'arrête à une distance où le champ n'est plus suffisant pour assurer l'ionisation du gaz. Le phénomène d'ionisation est alors limité à une couronne d'une épaisseur définie.

a. Caractéristiques I-V

La caractéristique courant-tension (ici désignée par caractéristique $I-V$) représente l'évolution du courant moyen collecté sur l'électrode de masse selon la tension appliquée sur l'électrode active.

Le courant de décharge est limité par la charge d'espace qui se trouve en dehors de la zone active de multiplication. Townsend a utilisé la géométrie cylindrique adéquate pour l'étude théorique afin d'évaluer le courant de décharge créé en considérant cette charge d'espace.

Pour cela, il prend en compte uniquement la conduction dans la région extérieure au volume de multiplication qui est une charge unipolaire balayée vers la contre électrode grâce au champ appliqué. Moyennant quelques approximations, il obtient la relation qui donne le courant de décharge par unité de longueur en fonction de la tension appliquée V , de la différence entre la tension appliquée V et de la tension seuil V_s , et des rayons r et R ($r \ll R$) des deux électrodes :

$$I = \frac{4\pi\epsilon_0 \cdot \mu \cdot V \cdot (V - V_s)}{R^2 \ln \frac{R}{r}}$$

Une relation de la même forme peut être appliquée pour d'autres géométries telles que la géométrie pointe-plan moyennant une constante C [GOL-78] :

$$I = C \cdot \mu \cdot V \cdot (V - V_s)$$

Pour une pointe négative-plan Lama et Gallo ont obtenu pour des rayons ($0,03 < r < 0,045$ mm) et des gaps de 4 à 16 mm la relation (I en μA , V en kV et d_{gap} en mm) [LAM-74]:

$$I = \left(\frac{52}{d_{gap}^2} \right) \cdot V \cdot (V - V_s)$$

La relation entre le courant et la tension appliquée est donc quadratique.

b. Régimes de décharge

En augmentant la tension appliquée est accompagnée une augmentation du courant de décharge. Une succession de régimes de décharge est alors observée, caractérisés par leurs tensions seuils et par la nature du courant (distinction des composantes continues et impulsionnelles du courant) qui leur correspond. La connaissance du fonctionnement d'une décharge passe nécessairement par sa caractérisation électrique : la quantification des composantes de courant continue et impulsionnelle est nécessaire pour identifier le régime de décharge. A la tension croissante, le courant moyen collecté sur l'anode augmente et différents régimes de décharges se succèdent. Ils sont définis par leurs plages de tensions respectives et par la nature (continu ou impulsionnelle) du courant de décharge. La caractéristique $I-V$ est donné par la Figure 6.

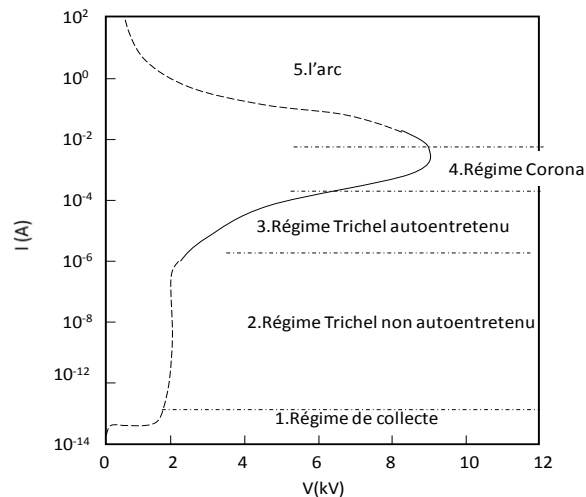


Figure 6 : caractéristique I-V pour une décharge pré-disruptive négative et régimes de décharge (air ambiant et à pression atmosphérique 1020 mbar et à température ambiante 25°C)

Les différents régimes de décharge qui défilent en augmentant la tension appliquée sont [NAS-71] :

- *Régime de collecte* : où le courant mesuré est dû à la collection des charges créées par l'ionisation du gaz par rayons cosmiques et par radioactivité naturelle et aux rayons cosmiques, il dépend donc entièrement des sources d'ionisation.
- *Régime de décharge de Trichel non-autoentretenu*: en dessous de la tension seuil, l'ionisation de Townsend est initiée, les électrons accélérés par le champ vont créer des avalanches électroniques, on observe alors une augmentation brusque du courant moyenné et des impulsions irrégulières. Cependant, la présence des électrons germes (créés par une source extérieure) est nécessaire pour entretenir la décharge.
- *Régime de décharge de Trichel autoentretenu* : Au-dessus de la tension seuil d'auto-entretien, des impulsions de Trichel deviennent régulières, la création d'électrons germes par une source extérieure n'est plus nécessaire. La charge d'espace négative engendre une décroissance du champ ce qui conduit à l'extinction de l'impulsion de Trichel, elle sera ré-initié quand les électrons s'éloignent vers l'anode.
- *Régime de Couronne* : Si la tension est plus élevée, la fréquence des impulsions devient de plus en plus élevée, le temps entre deux impulsions successives devient plus petit que la durée d'une impulsion : ce régime est donc caractérisé par l'absence d'impulsions. Cependant, physiquement il n'est que la continuité du régime de Trichel.

Régime d'arc : Un pont faiblement conducteur s'établit entre les électrodes induisant une forte augmentation du courant de décharge, la température dans la décharge augmente donc ce qui induit une diminution de la densité du gaz et donc l'augmentation de sa résistance ce qui

entraîne l'augmentation du courant de décharge : c'est l'emballement du courant, une résistance de protection est alors utilisée pour limiter ce courant. Ce régime n'est pas retenu pour la charge des aérosols en raison de la production transitoire d'ions et de l'érosion des électrodes [BOR-09].

I.2.3. Ions produits par une décharge pré-disruptive dans l'air à pression atmosphérique

I.2.3.1. Propriétés

Selon les différentes théories (cf. §.I.3.7), la charge d'un aérosol dépend au premier ordre de sa taille et du produit $N_i.t$, mais aussi des propriétés physiques des ions à savoir le libre parcours moyen (λ_i en m), la vitesse d'agitation thermique moyenne (c_i en m.s^{-1}) et le coefficient de diffusion (D_i en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$). Cependant, toutes ces propriétés peuvent être estimées par la connaissance de la masse des ions (m_i en kg) et de leurs mobilités (Z_i en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}.\text{V}^{-1}$).

$$\bar{c}_i = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m_i}}$$

$$D_i = \frac{k T Z_i}{ne}$$

$$\lambda_i = \frac{1}{\pi N_a \sigma_{i,a}^2 \sqrt{1 + \frac{m_a}{m_i}}}$$

Avec k la constante de Boltzmann, T la température, N la densité du gaz (10^{25} m^{-3} CNTP), $\sigma_{i,a}$ le diamètre efficace de collision ion-azote (de l'ordre de 0,6 nm CNTP) et m_a la masse d'une molécule d'azote.

Il existe un large spectre d'ions lié à la complexité de la nature chimique des ions dans l'air qui dépend de la méthode de production des ions (rayonnement, décharge...), de la nature des contaminants dans l'air, de l'humidité présente dans l'air et de l'âge des ions. La mobilité utilisée est généralement celle du mode principal du spectre d'ions ou la moyenne.

Les mobilités moyennes et les masses des ions négatifs et positifs produits par une décharge pré-disruptives utilisées dans la littérature par différents auteurs sont données ci-dessous (cf. Tableau 1). Les mobilités des ions négatifs sont généralement 20 à 30 % plus élevées que pour les positifs.

Tableau 1 : valeurs des propriétés ioniques (mobilités et masses) utilisés dans la littérature

Auteurs	Z^+ [cm ² .V ⁻¹ . s ⁻¹]	Z^- [cm ² .V ⁻¹ . s ⁻¹]	m^+ [uma]	m^- [uma]
Vohra (1969)	1,40	1,90	109	50
Mohnen (1977)	1,40	1,90	130	100
Hussin et al. (1983) et Adachi et al. (1986)	1,15	1,39	140	101
Porstendorfer et al. (1983)	1,15	1,39	140	101
Wen et al. (1984)	1,40	1,90	130	130
Hoppel et Frick (1986)	1,20	1,35	150	90
Wiedensohler et Fissan (1991)	1,35	1,60	148	130
Hoppel et Frick (1990)	1,33	1,84	200	100
Wiedensohler et Fissan (1991)	1,40	1,60	140	101
Reischl et al. (1996)	1,15	1,425	290	140

Vieillessement des ions : En dépit de leur origine, les ions libres sont connus pour leur courte durée de vie (moins de 10 μ s) dans les conditions atmosphériques ordinaires [GRA-87] [MAR-78]. Aussitôt qu'ils sont formés ils participent à des réactions avec les molécules environnantes pour former des clusters. L'évolution des propriétés physiques d'un ion dépend donc des variétés des espèces présentes et leurs concentrations respectives (H₂O, SO₂, NH₃, NO_x...).

La distribution des mobilités et des masses d'ions dépend fortement de l'âge des ions. Différents travaux ont été effectués sur le vieillissement des ions ([ZEL-31],[MAR-11] [ALO-09]). Alonso par exemple a montré que le spectre de mobilités d'ions crée par l'américium (²⁴¹Am) est de plus en plus décalé vers les faibles mobilités au fur et à mesure que l'âge des ions augmente (cf. Figure 7).

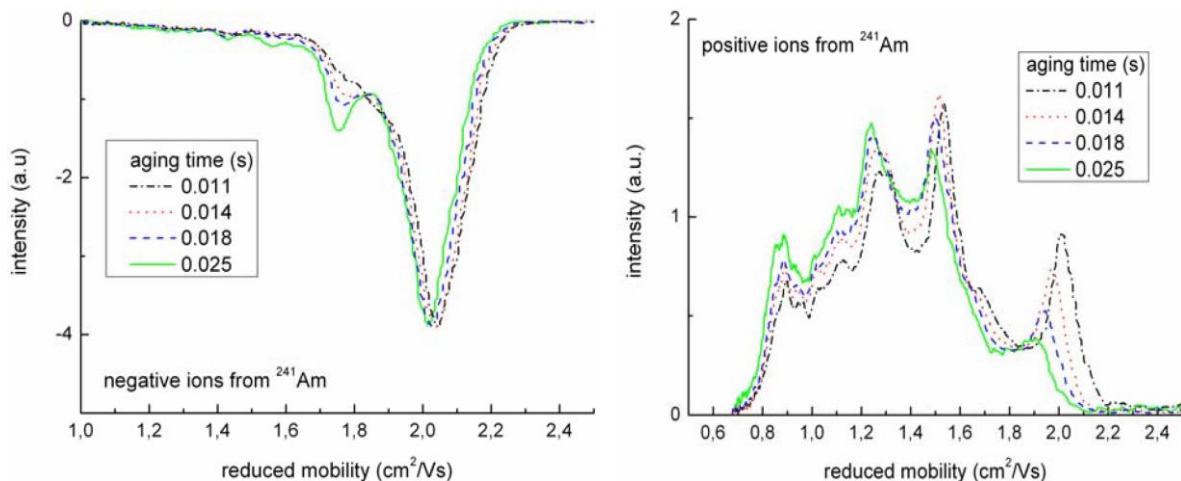


Figure 7 : évolution de la distribution de la mobilité des ions négatifs (a) et positifs (b) produit par ²⁴¹Am selon leur âge [ALO-09]

Avec le vieillissement, le spectre des masses quant à lui est décalé vers les masses plus grandes.

Dépendance à la tension appliquée : En plus des travaux sur le vieillissement des ions, Alonso et al. ont étudié l'effet de la tension appliquée dans une décharge couronne sur la mobilité des ions dans les deux polarités. Pour une polarité de décharge donnée, il a été montré que lorsque l'on augmente la tension appliquée, le spectre des mobilités se décale vers les faibles mobilités. Ceci, est dû aux pertes électrostatiques de plus en plus élevées avec la tension, d'autant plus important que la mobilité des ions est grande.

Sekimoto et al. (2007) [SEK-07] ont étudié l'effet de la tension appliquée sur les spectres des masses. Celui-ci est décalé vers les grandes masses en augmentant la tension appliquée. Cette croissance de la masse des ions est cohérente avec la décroissance de la mobilité observée par Alonso puisque la mobilité d'un ion décroît avec sa masse.

I.2.3.2. Répartition dans l'espace inter-électrodes

Pour une décharge pré-disruptive, la distribution de la densité ionique au plan dépend essentiellement de la distribution du champ électrique en chaque point du gap. Le champ électrique varie en fonction de la distance inter-électrodes d_{gap} et de la distance r de l'axe de la pointe [GOL-78].

Les premières expériences conduites par Warburg (1899) décrivent la répartition d'une charge d'espace unipolaire dans un système pointe-plan [WAR-89]. Il rapporte que la distribution de la densité du courant ionique sur le plan $j(\theta)$ suit la loi $\cos^m \theta$ dite la loi de Warburg. Cette loi suit la forme :

$$j(\theta) = j_0 \cos^m \theta, \begin{cases} m = 4,82 ; \text{corona positive} \\ m = 4,65 ; \text{corona négative} \\ \theta \leq 60^\circ \end{cases}$$

Avec : $J_0 \sim \frac{I}{2.d_{gap}^2}$

j_0 est la densité du courant sur l'axe de la pointe ($r = 0$) et où, $\theta = \arctg(r/d_{gap})$,

La loi est plus connue sous la forme de $J(\theta) = J(0) \cos^5 \theta$.

La loi de Warburg a été confirmée par plusieurs auteurs. Elle a été validée sur une large gamme du courant de décharge. En 1974, Dupuy et Goldman [DUP-74] ont étudié le domaine

de validité de la loi, les expériences ont été menées pour une décharge dans l'air atmosphérique pour des pressions allant de $40 \cdot 10^3$ à $120 \cdot 10^3$ Pa.

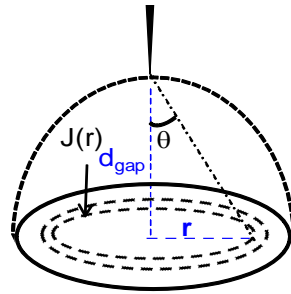


Figure 8 : schéma descriptif de la répartition de la densité du courant ionique au plan

Ils ont montré que pour des distances inter-électrodes d_{gap} allant de 0,5 à 3 cm, la loi reste valide pour tous les régimes impulsionnels ou continus pour une décharge couronne négative.

Les distributions de charge ρ ne sont généralement pas obtenues par mesure directe, mais peut être déduite par le calcul de la densité du courant ionique au plan $\rho(\theta)$ et du champ au plan E . La formule reliant la densité du courant, la densité de charge et le champ permet alors de déduire la densité de charge au plan :

$$j = \rho \mu E$$

L'expression du champ au plan a été donnée par J.E. Jones et al. [JON-97] :

$$E(\theta) = E_0 \cos^n \theta$$

avec $n= 1,8$ pour les décharges à petite échelle, et $n= 2$ pour les décharges à grande échelle.

La densité de charge déduite des deux relations précédentes est donnée par l'expression suivante : $\rho(\theta) = \rho_0 \cos^{m-n} \theta$

Ainsi l'exposant $m-n$ est donné selon les différents cas :

Décharges à petite échelle (i.e d_{gap} millimétrique) : $m-n=3,02$ (Corona positive) ; $2,85$ (Corona négative)

Décharges à grande échelle : $m-n=2,82$ (Corona positive) ; $2,65$ (Corona négative)

La densité d'ions est directement liée à la densité de charge :

$$N_i(\theta) = \rho/e$$

Une loi équivalente à la loi de Warburg donnant la distribution de la densité du courant est donnée par Sigmond [SIG-81].

Sigmond bâtit son raisonnement sur la formule donnant l'évolution d'une densité de charge unipolaire dérivant dans un gaz avec une mobilité μ constante sous un champ électrique qui varie en fonction du temps et de l'espace ($\frac{1}{\rho(t)} - \frac{1}{\rho(t_0)} = \frac{\mu}{\varepsilon_0} (t - t_0)$).

$$J(\theta) = J_0(1 + 2tg^2\theta)^{-5/2}$$

La Figure 9 permet de comparer les courbes obtenues à partir des deux lois de Warburg et de Sigmond.

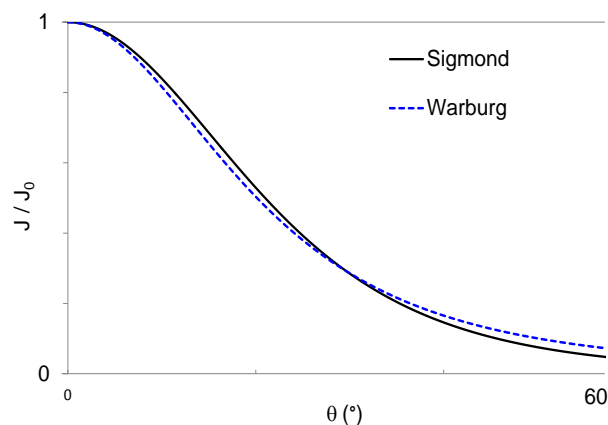


Figure 9 : comparaison entre le profil de densité du courant ionique de Warburg et Sigmond au plan pour une décharge négative pointe-plan ($d_{gap}=13$ mm)

L'écart entre les courbes obtenues par ces deux lois est de moins de 3 %.

I.2.3.3. Pertes d'ions aux parois par effet des répulsions électrostatiques

Un nuage d'ions unipolaire tend à s'étendre sous l'effet des répulsions électrostatiques : lors du transport d'ions, une part non négligeable est perdue aux parois servant au transport Whitby [WHI-61]. En particulier, il a été prouvé mathématiquement et expérimentalement que les formules de dispersion en géométrie sphérique sont utilisables en géométrie cylindrique moyennant des approximations peu contraignantes, et permettent d'estimer ces pertes (ce qui est important dans notre étude expérimentale sur les pertes aux parois (source d'ions et chargeur)).

Dans le cas simple d'un nuage sphérique, la vitesse d'expansion des ions à une distance r du centre du nuage est donnée par :

$$v = \mu E_r$$

En couplant cette équation avec l'équation de conservation de la masse ($d\rho/dt = -\rho \text{div}(v)$), on obtient l'équation gouvernant l'évolution d'un nuage ionique (le cas cylindrique est traité dans [BAI-99]). En termes de concentration et de mobilité, cette équation devient :

$$\frac{dn}{dt} = -\psi n^2$$

où Ψ est la constante de taux d'expansion donnée par : $\psi = \frac{Be^2}{\varepsilon_0}$

Cette équation a une solution analytique connue :

$$\frac{n}{n_0} = \frac{1}{1 + n_0 \cdot \psi \cdot t}$$

avec n_0 , la concentration initiale.

I.3. Aérosols

I.3.1. Définition

Inventé par l'allemand Schmauss en 1920, le mot aérosol désigne une suspension dans un milieu gazeux (l'air dans la plupart des cas), de particules solides et/ou liquides présentant une vitesse limite de chute négligeable. En toute rigueur, l'aérosol est un système diphasique formé par les particules et le gaz porteur, toute fois en pratique le terme aérosol désigne souvent les particules seules. Les aérosols interviennent dans de nombreux phénomènes naturels : formation des nuages et des précipitations, les échanges océans-atmosphère, influences sur la couche d'ozone. Ils représentent désormais l'un des principaux vecteurs de la pollution et de la radioactivité atmosphérique. On les retrouve de plus en plus dans de nombreux domaines industriels.

I.3.2. Mécanisme de formation des aérosols

L'existence de l'aérosol atmosphérique résulte de deux mécanismes essentiels : le premier est la nucléation qui génère des particules de quelques nanomètres. Le deuxième mécanisme est la formation mécanique par arrachement qui produit les particules les plus grosses de l'ordre du μm .

Nucléation (homogène et hétérogène): Le passage d'un état gazeux à un état solide (formation de particules) nécessite la saturation d'un composé gazeux ($P_i > P_{Si}$, où P représente la pression partielle du gaz considéré et P_{Si} sa pression de vapeur saturante). La nucléation homogène qui se produit en absence de particules requiert des sursaturations très élevées, généralement bien au-dessus de 200% (un rapport de saturation $S= 2$) [MAD-75]. La nucléation hétérogène quant à elle se produit pour des rapports de saturation avoisinant l'unité, des particules stables peuvent donc être formées (des brouillards d'eau peuvent se

former pour une humidité relative de 99% c.a.d $S= 0,99$). La nucléation forme des particules fines allant de quelques nanomètres à 100 nm).

Arrachement mécanique : Des particules plus grosses (dépassant le micromètre) peuvent être formées par arrachement mécanique.

I.3.3. Croissance de l'aérosol

Une fois formé les aérosols peuvent « croître » par agglomération des particules ce qui génère des particules de quelques dizaines de nm à centaines de nm. Ainsi, la distribution en taille d'un aérosol atmosphérique est le plus souvent tri-modal [HIN-82].

Les noyaux de condensation produits par nucléation peuvent ensuite grossir atteignant des tailles de rayon dépassant la centaine de nanomètre). Différents processus de formation peuvent être décrits :

- La condensation de vapeurs sur les particules existantes (ou condensation hétérogène).
- La coagulation brownienne due aux collisions entre les noyaux en mouvements browniens.
- La coagulation coulombienne entre des particules de signes opposés.

Les deux premiers processus sont actifs pour des concentrations d'aérosol dépassant 10^7 cm^{-3} . Les particules d'aérosol peuvent aussi disparaître, selon leurs tailles, par diffusion ou impaction sur les surfaces, par sédimentation sous l'action de la gravité et lors des processus de précipitations atmosphériques (neige, pluie), par lavage lors de la précipitation elle-même ou alors par processus électrostatiques pour les particules chargées. Ces processus de disparition déterminent le temps de vie des particules dans l'atmosphère.

I.3.4. Propriétés des aérosols

Les particules d'un aérosol possèdent différentes propriétés : taille, concentration massique et numérique, mobilité, nature, forme ou structure. Les plus importantes sont le diamètre de la particule et la concentration numérique de l'aérosol.

I.3.4.1. Diamètre

La taille des particules est le paramètre le plus important pour caractériser le comportement des aérosols. L'aérosol peut couvrir cinq ordres de grandeur de taille allant de $0,001 \mu\text{m}$ à $100 \mu\text{m}$ de diamètre. Les propriétés des aérosols dépendent fortement de leurs tailles. De plus, la nature des lois qui gouvernent ces propriétés change selon la gamme de taille en question. Les particules les plus fines approchent la taille des grosses molécules de gaz. Elles ont donc

des propriétés similaires. Les particules les plus grosses sont visibles à l'œil nu possèdent des propriétés qui sont décrites par la physique Newtonienne.

Les particules liquides ont une forme quasi-sphérique. La forme des particules solides, quant à elle est souvent complexe. Cependant, dans le développement de la théorie des aérosols, il est souvent nécessaire de supposer que les particules sont sphériques. Un diamètre équivalent défini comme étant le diamètre d'une particule sphérique qui aurait les mêmes valeurs des propriétés physiques que celles d'une particule irrégulière. Le plus utilisé est le diamètre aérodynamique diamètres d_a qui est diamètre d'une particule sphérique de masse volumique 1000 kg.m^{-3} , ayant la même vitesse de sédimentation V_{TS} qu'une particule de diamètre équivalent de et forme quelconque.

Diamètre de mobilité électrique : Afin de définir le diamètre de mobilité électrique D_m il convient d'introduire la mobilité électrique. La mobilité électrique correspond à la vitesse qu'acquiert une particule de charge $N.e$ dans un champ électrique E . Ainsi la mobilité électrique Z_p correspond à : $Z_p = \frac{v_{TE}}{E} = NeB = \frac{NeC_c}{3\pi\mu D_m}$

Avec v_{TE} la vitesse terminale électrostatique, E le champ électrique, N le nombre de charge par particules, e la charge élémentaire μ la viscosité du gaz, B la mobilité mécanique (qui caractérise les forces exercées par le gaz porteur sur la particule en mouvement), C_c le facteur de correction de Cunningham

Le diamètre de mobilité électrique équivalent D_m est alors défini comme étant le diamètre d'une particule sphérique ayant la même mobilité électrique Z_p que la particule considérée.

$$D_m = \frac{C_c}{3\pi\mu B}$$

I.3.4.2. Concentration

La concentration massique (en g/m^3 , mg/m^3 ou $\mu\text{g/m}^3$) était le type de concentration la plus souvent utilisée car plus simple à mesurer et les normes environnementales portaient sur cette concentration [HIN-82]. Toutefois la concentration numérique qui donne le nombre de particules par unité de volume donnée en cm^{-3} semble plus critique du point de vue santé et environnement, les normes étant passées en nombre récemment.

I.3.5. Nombres adimensionnels en physique des aérosols

L'interaction est permanente entre les particules et le fluide porteur de ces particules. Il convient donc de décrire, en fonction des paramètres physiques (taille des particules, vitesse

du fluide, nature de l'écoulement), les différents domaines physiques et les mécanismes qui y sont associés [BOU-98].

Le nombre de Reynolds et le nombre de Knudsen permettent de décrire l'interaction entre les particules et le fluide, et de choisir l'approche physique utilisée pour décrire les processus importants dans une situation donnée.

Le nombre de Reynolds : associé à l'écoulement du fluide autour de la particule est appelé nombre de Reynolds de la particule et permet de décrire le type d'écoulement (laminaire, turbulent ou intermédiaire). Re_p est donné par :

$$Re_p = \frac{\rho V d_p}{\eta}$$

Où ρ est la densité du gaz, V la vitesse relative entre le gaz et la particule et η la viscosité du gaz. La Figure 10 montre schématiquement l'écoulement autour d'une sphère pour différentes valeurs du nombre de Reynolds.

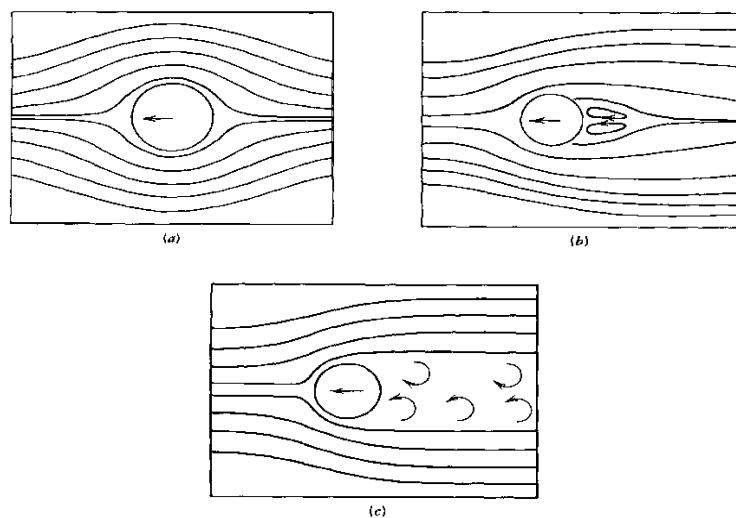


Figure 10 : écoulement autour d'une sphère. (a) écoulement laminaire, $Re_p \approx 0,1$. (b) écoulement turbulent, $Re_p \approx 2$. (c) écoulement turbulent, $Re_p \approx 250$. [HIN-82]

Les nombres de Reynolds associés à l'écoulement de l'air autour des particules seront, dans le cas de notre étude expérimentale (Pour les particules polluantes submicroniques ou microniques) et dont la vitesse par rapport à l'air est de l'ordre du $m.s^{-1}$, $Re_p \approx 0.06$. L'écoulement est donc laminaire autour de ces particules.

Le nombre de Knudsen : (noté K_n) est le rapport entre le libre parcours moyen des molécules du gaz porteur (pour l'air à pression atmosphérique, $\lambda = 65 \text{ nm}$) et la taille des particules (rayon r_p). On a donc :

$$K_n = \frac{\lambda}{r_p}$$

Le nombre de Knudsen permet de répartir en trois régimes les situations rencontrées :

- $K_n \rightarrow 0$: Régime continu ; le gaz peut être considéré comme un fluide continu pour les particules
- $K_n \rightarrow \infty$: Régime moléculaire ; la particule d'aérosol peut être considérée comme une particule de gaz et la théorie cinétique des gaz s'applique dans ce cas
- $K_n \approx 1$: Régime intermédiaire

I.3.6. Mesures granulométriques d'aérosol

La première partie de ce paragraphe concerne des généralités sur des instruments de mesures, notamment leurs caractéristiques. La seconde partie vise à donner un aperçu des différentes méthodes de mesure granulométriques de l'aérosol et plus spécialement des méthodes basées sur la charge des particules.

I.3.6.1. Caractéristiques des instruments de mesures

Tout instrument de mesure (pour tous domaines confondus) est caractérisé par différentes grandeurs dont les définitions sont données ci-dessous :

a. Etendue de mesure

C'est l'ensemble des valeurs d'une grandeur à mesurer pour lesquelles l'erreur d'un instrument de mesure est supposée maintenue entre des limites spécifiées. Ces limites supérieures et inférieures de l'étendue spécifiée sont parfois appelées respectivement "portée maximale" et "portée minimale".

b. La résolution

La plus petite variation d'une grandeur pouvant être décelée par l'instrument.

c. La sensibilité

Le rapport entre l'accroissement de la réponse Δd sur l'accroissement de la grandeur mesurée (Δm) : $S = \Delta d / \Delta m$

d. Justesse

Aptitude d'un instrument de mesure à donner des indications égales à la valeur vraie de la grandeur mesurée dans des conditions données.

e. Fidélité

Aptitude d'un instrument de mesure à donner pour une même valeur de la grandeur mesurée et dans des conditions identiques, des valeurs voisines (l'écart dans l'erreur de mesure).

f. Répétabilité

Ecart observé lorsque l'on mesure successivement une même grandeur dans des conditions identiques (même opérateur, même lieu, mesures effectuées successivement dans une courte période de temps, même méthode).

g. Reproductibilité

Ecart observé lorsque l'on mesure successivement une même grandeur en faisant varier les conditions (changement d'opérateur, de lieu, de temps, de méthode).

h. Exactitude

Aptitude d'un instrument de mesure à donner des indications proches de la valeur vraie d'une grandeur mesurée. Elle représente la qualité globale de l'instrument, dans des conditions données.

L'erreur d'exactitude comprend l'erreur de justesse et l'erreur de fidélité. Elle correspond donc à l'incertitude de mesure de l'instrument.

I.3.6.2. Méthodes de mesures

La granulométrie peut être définie comme l'étude de la distribution statistique des tailles d'une collection d'éléments finis de matière naturelle ou fractionnée. L'analyse granulométrique porte sur l'ensemble des opérations permettant de déterminer la distribution des tailles des éléments composant la collection. La distribution granulométrique est la représentation sous forme de tables de nombres ou de graphiques des résultats expérimentaux de l'analyse granulométrique.

Plusieurs méthodes sont utilisées pour déterminer le spectre granulométrique des aérosols, le choix d'une méthode est déterminée par plusieurs paramètres liée à l'aérosol proprement dit (gamme des dimensions, concentration...), aux conditions thermodynamique (température, pression, débit..) et à l'exploitation du système de mesure (fréquence de mesure, rapidité d'acquisition et le coût).

Différentes méthodes sont souvent employées pour les mesures granulométriques de l'aérosol [WIL-92] [BOU-98]. Une large gamme d'instruments de mesures commercialisés sont basées

sur l'une de ces méthodes (cf.§.I.3.6.2) Dans ce qui suit, nous présentons un aperçu sur les différentes méthodes de collection de type mécanique, aérodynamique, optique ou électrique.

a. Collection sur filtre

La méthode de collection sur filtre est la technique la plus largement utilisée en vue de sa simplicité de mise en œuvre et son faible coût. Un échantillon représentatif de l'aérosol est recueilli sur le media filtrant. Un échantillonneur composé d'une tête de prélèvement employée pour éliminer les particules indésirables (insectes, gouttes de pluie...), un filtre, un dispositif de mesure de débit et d'un système de pompage. La Figure 11 donne un schéma représentant les différents composants d'un système de collection d'aérosol par filtration.

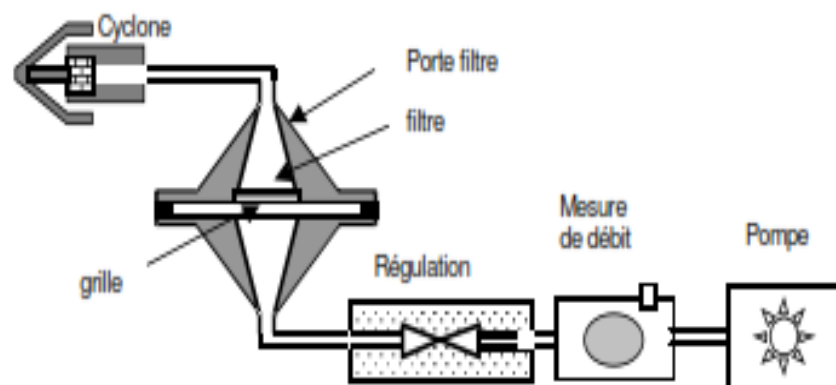


Figure 11 : schéma du système de collection par filtration

Les analyses ultérieures des filtres sont généralement gravimétrique (obtention de la masse collectée par pesée). Cependant, des analyses plus fines peuvent parfois être effectuées (par exemple par spectroscopie de fluorescence X pour les métaux), afin de connaître la composition chimique des particules recueillies, ou bien encore par microscopie optique ou électronique, afin d'obtenir des observations sur leur taille ou sur leur morphologie. Différents facteurs peuvent intervenir sur le choix du type de filtre à employer. On peut citer l'efficacité de collection, la perte de charge en fonction de la vitesse de filtration, les contraintes du coût mais surtout la compatibilité avec la méthode d'analyse à employer.

Les principaux problèmes liés à l'utilisation des filtres résident dans l'occurrence d'artéfacts d'échantillonnage positifs (espèces gazeuses piégées dans le filtre) et négatifs (espèces particulaires volatilisées).

b. Méthodes aérodynamiques

Ces méthodes sont développées essentiellement en vue d'une analyse ultérieure ou alors pour une classification en dimension. Elles reposent sur les propriétés aérodynamiques des particules telles la classification inertielle, la sédimentation et la centrifugation.

Parmi ces méthodes, les impacteurs dont le principe repose sur la classification inertielle sont les dispositifs les plus largement utilisés et étudiés. Un impacteur est composé de plusieurs étages ; chaque étage d'impaction est constitué d'un ajutage dirigeant un jet d'air à haute vitesse contre une surface solide. Les particules ayant un diamètre supérieur au "diamètre de coupure", se voient impactées sur la surface solide. La Figure 12 montre le schéma de principe d'un étage impacteur.

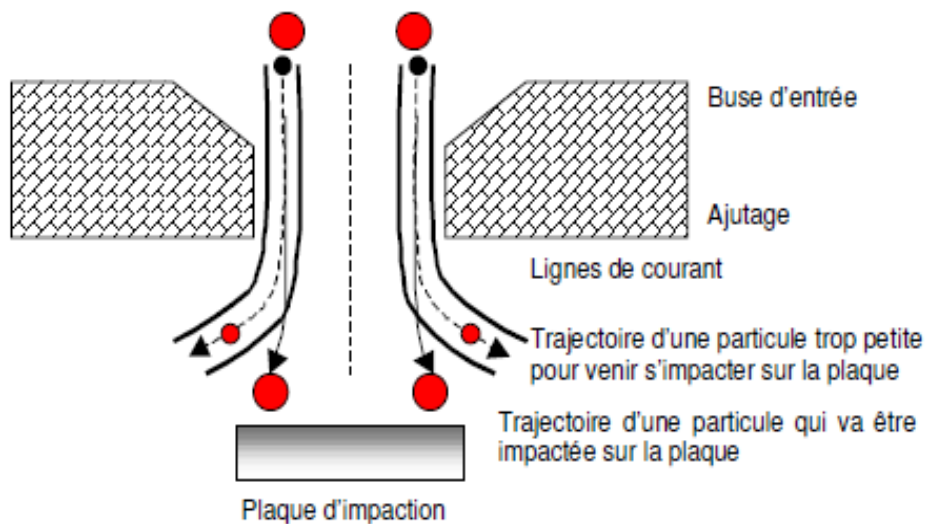


Figure 12 : schéma de principe d'un étage impacteur

Le principe de fonctionnement de l'impacteur réside dans le nombre de Stokes de la particule.

Il est défini par :

$$St = \frac{\tau_r \cdot V}{R}$$

τ_r est le temps de relaxation de la particule, V la vitesse moyenne dans l'ajutage et R le rayon de l'ajutage.

Pour collecter des particules de plus en plus fines (possédant donc des temps de relaxation de plus en plus faibles), il est nécessaire d'augmenter V et/ou diminuer R . Ainsi, en disposant de plusieurs étages avec des ajutages de rayons de plus en plus petits et donc de vitesse de plus en plus grandes, il serait possible de fractionner un aérosol polydispersé en un nombre de

classes égal au nombre d'étages de l'impacteur. Enfin, la masse recueillie sur chaque étage sera mesurée ce qui permet d'établir la granulométrie en masse de l'aérosol.

Ces méthodes nécessitent donc un prélèvement avec collection puis une analyse ultérieure au laboratoire. Les délais pouvant être importants entre la collection et l'analyse peut induire la modification de l'aérosol étudié, notamment pour l'identification des aérosols ultrafins dont la dynamique peut être rapide du fait notamment de la "coagulation".

Néanmoins, il existe des impacteurs "quasi-temps réel", qui sont des impacteurs munis de microbalance à cristaux de quartz piézo-électrique (impacteurs QCM). Ils sont cependant d'utilisation délicate et réservés à des conditions de laboratoire parfaitement contrôlées. Les impacteurs dits électriques couvrant un large domaine de dimensions, mais le temps de mesure reste aussi assez long (~ la minute pour des concentrations allant de 1 à 100 cm⁻³).

Ces inconvénients majeurs justifient l'effort permanent en métrologie des aérosols pour aboutir à des méthodes et des techniques de mesure en temps réel. Le temps de réponse de ces appareils de mesure, basés sur ces deux premières techniques de mesures granulométriques, étant supérieure à la minute les rend incompatible avec une mesure à 10 Hz.

c. Méthodes optiques

Elles font appel aux lois de diffusion de la lumière par les particules (cf. Figure 13). Lorsqu'une particule est éclairée par un faisceau lumineux elle réémet de la lumière dans toutes les directions de l'espace : c'est le phénomène de diffusion. Elles sont classées en fonction de la position du récepteur par rapport à la source de la lumière : dans l'axe (microphotographie, ombroscopie, holographie, extinction, diffraction), et hors axe (compteurs de particules, méthodes Doppler). Une deuxième classification peut aussi être envisagée en distinguant les méthodes ponctuelles où les particules sont analysées une à une et les méthodes intégrales pour lesquelles on utilise une information globale.

Même si les mesures optiques peuvent être faites en temps réel, ce qui permet de contourner l'inconvénient majeur des mesures aérodynamiques, différentes limites peuvent être recensées selon la méthode choisie : la taille des particules, leur concentration, particules non sphériques, particules absorbant la lumière ou encore la lenteur de dépouillement des résultats.

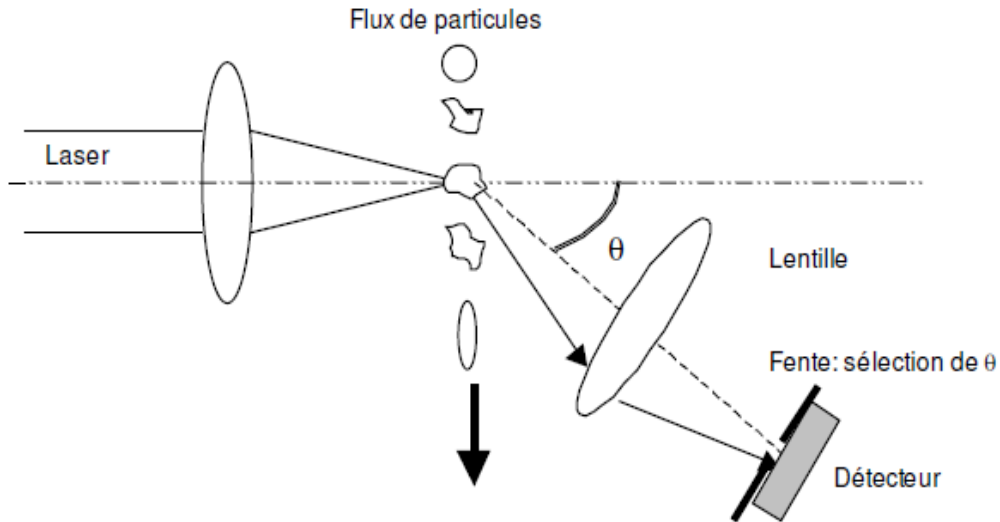


Figure 13 : schéma de principe de mesure d'un compteur optique

Cependant, d'une manière générale l'inconvénient principal des méthodes optiques est lié à la limite inférieure en taille des particules de quelques dizaines de nanomètres. Dans le meilleur des cas pour des particules de taille d'environ 200 nm et selon la longueur d'onde de la lumière utilisée le grossissement des particules, par condensation hétérogène, permet de contourner cet inconvénient [MCM-99]. Cependant, cette étape nécessite un temps de quelques secondes ce qui rallonge le temps de réponse de l'appareil de mesure. La gamme de taille à prendre en compte dans le système de mesure à développer est de 10-1000 nm, une mesure optique ne peut être envisagée.

d. Méthodes « électriques »

Ces méthodes sont basées sur la charge de l'aérosol puis la séparation selon la taille. En effet, la plupart des particules peuvent acquérir des charges que ce soit de façon naturelle ou artificielle. Cette propriété de charge électrostatique est souvent utilisée pour connaître la distribution en taille (et donc la concentration) des aérosols. Si ces particules chargées sont soumises à un champ électrique, les forces électriques qu'elles subissent peuvent devenir prépondérante par rapport aux autres forces (force de gravité, d'inertie ou celles dues à la diffusion brownienne).

La force qui s'applique à une particule de charge $q.e$, placée dans un champ E s'écrit :

$$\vec{F} = q.e.\vec{E}$$

q est le nombre de charges portées par la particule, e la charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C) et E le champ électrique.

La vitesse limite de dérive dans un gaz au repos d'une particule de charge :

$$V_p = \mu_p \cdot E = B \cdot q \cdot e \cdot E$$

μ_p : la mobilité électrique de la particule et B est la mobilité dynamique.

Les méthodes de mesure utilisant les propriétés électriques des aérosols sont généralement réalisées en suivant quatre étapes successives :

e. Marquage des particules

Le marquage des particules se fait en fixant une ou plusieurs charges électriques aux particules afin de leur conférer une mobilité électrique. Pour charger l'aérosol, différents mécanismes de charge existent: (1) la tribo-électrification qui regroupe la charge par contact et la charge par friction, (2) la charge thermo-ionique qui a lieu lors de l'élévation de température des particules engendrant l'émission d'électrons, (3) la charge par effet photo-électrique qui utilise l'énergie des rayonnements ultraviolets pour ioniser les particules et enfin (4) la charge par collection d'ions gazeux [WIL-92]. La charge par nuage d'ions s'avère la plus reproductible et la plus contrôlable [FLA-98]. Ses ions sont produits par des sources radioactives ou des sources plasmas à pression atmosphérique. Les sources radioactives produisent des ions bipolaires [STO-91], or la mesure du courant dans un environnement bipolaire est délicate, la charge dans un nuage d'ions unipolaire est alors préférable. Les sources plasmas et particulièrement les décharges couronnes sont particulièrement adaptées à cet effet. Aussi, elles sont simple de conception, robustes et peu coûteuses.

f. Séparation et sélection des particules

Différentes catégories d'analyseurs ont été développées pour la mesure des aérosols. Ils sont regroupés selon leur ordre qui rend compte de la présence ou non de la différenciation soit entre le flux d'aérosol et le fluide vecteur, soit sur les électrodes [BOU-98].

- Analyseur d'ordre zéro : Ce genre d'appareil est le plus répandu en raison de sa simple conception et de la facilité de mesure de la concentration ionique (ou de charge) totale. Dans ce type d'analyseurs il n'existe aucune différenciation, il est composé de plaques planes ou deux électrodes cylindriques concentriques, il est ainsi possible de mesurer soit le signal

représentant la fraction d'ions (ou particules chargées) captée sur l'électrode axiale, soit celle qui représente les ions traversant le dispositif sans qu'ils soient captés (cf. Figure 14a).

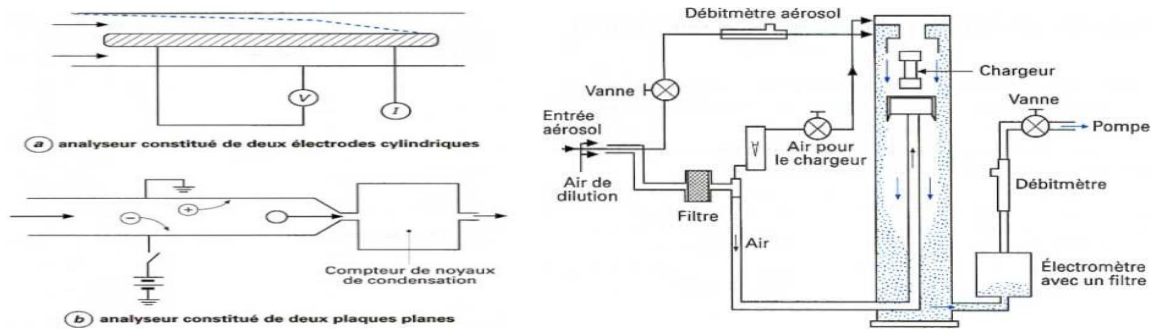


Figure 14 : analyseur de mobilité d'ordre (a) zéro et (b) d'ordre 1

- Analyseur d'ordre 1 (cf. Figure 14b). : Dans ce type d'appareil il y a une différenciation, ils sont soit à électrodes divisées ou à débit divisé pour lesquelles le domaine d'application est plus vaste (appareil de Whitby et Clark- l'analyseur électrique d'aérosol). Dans ces analyseurs, l'aérosol est chargé par diffusion unipolaire, les particules chargées (ou les ions) dont la mobilité est supérieure à la mobilité critique sont captées par l'électrode centrale, il est ainsi possible d'accéder à la granulométrie en variant la valeur du champ électrique. En pratique la gamme de taille couverte par ce type d'analyseur se situe entre 0,01 et 1 μm [BOU-98].

- Analyseur d'ordre 2 : Ces analyseurs possèdent deux différenciations. Le débit total est divisé en deux parties l'une contenant l'air filtré et l'autre contenant les particules à mesurer. Aussi, l'électrode centrale est divisée en deux parties mais la mesure du courant ne s'effectue que dans la partie la plus en aval de cette électrode.

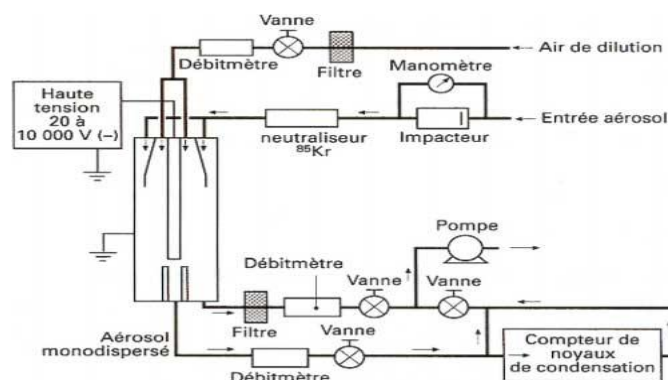


Figure 15 : analyseur de mobilité électrique d'ordre 2 (ou ADME)

Contrairement aux deux méthodes précédentes, cette méthode permet d'accéder, à l'aide d'une seule mesure, à la valeur moyenne de la fonction de répartition en mobilité. L'intervalle

de mesure dépend de la valeur relative des débits et des longueurs de chaque partie de l'électrode, ce qui leur a conféré le nom d'Analyseur Différentiel de mobilité électrique (ADME).

g. Détection des particules sélectionnées

La détection des particules sélectionnées est généralement assurée soit à l'aide d'un électromètre qui mesure le courant de charge portées par les particules, soit par le compteur de noyaux de condensation (CNC) qui mesure la concentration numérique .

h. Traitement des données

Le traitement des données obtenues doit aboutir à une distribution en dimension correspondant à chaque classe de mobilité électrique. Cependant, des particules de dimensions différentes peuvent apparaître dans la même classe de mobilité électrique si elles portent des charges multiples. Dans ce cas, on est contraint de faire appel à des techniques d'inversion.

I.3.6.3. Instruments de mesure granulométriques d'aérosols

Différents instruments de mesure d'aérosol sont déjà disponibles dans le commerce. Ces instruments de mesures peuvent être classés selon le principe d'opération employé (e.g. mobilité électrique, diamètre aérodynamique, masse, émission photoélectrique..). Ici, l'intérêt est porté sur les instruments qui se basent sur la mobilité électrique qui est la méthode la plus adéquate pour un aérosol de taille inférieure à 1 μm . Un bref aperçu est tout de même donné pour les instruments se basant sur les autres principes.

Les plus connus de ces instruments sont le SMPS (Scanning mobility Particle Sizer), le EAA (Electrical Aerosol Analyser), le EAS (Electrical Aerosol Spectrometer) et le EEPS (Engine Exhaust Particle Sizer).

Dans ce qui suit, une brève description de chacun de ces instruments ainsi qu'une comparaison des différents critères est donnée.

a. Scanning Mobility Particle Sizer

Le SMPS (cf. Figure 16) est l'un des instruments les plus utilisés pour les mesures granulométriques d'aérosol dont la gamme taille varie de 3 à 1000 nm. Il est composé de trois parties : (1) le chargeur, (2) la colonne de classification et (3) du système de détection. Le chargeur, qui en réalité est un neutraliseur, est une source radioactive bipolaire de krypton ^{85}Kr . L'aérosol est ensuite injecté dans la colonne de classification appelée le DMA (Differential Mobility Analyser) et qui permet de classer les particules selon leurs mobilités

électriques. Le DMA est composé de deux électrodes cylindrique et concentriques. L'électrode interne est soumise à une tension négative contrôlable. Un "sheath air" est injecté autour de cette électrode interne quand l'aérosol est introduit du côté de l'électrode externe.

Initialement le DMA est utilisé pour générer un aérosol monodispersé à partir d'un aérosol polydispersé. En effet, pour une tension appliquée, le DMA permet de sélectionner des aérosols d'une même mobilité électrique. Après la contribution de Knudson et Whitby (1975) [KNU-75], l'instrument est alors utilisé pour la mesure de la distribution en taille de l'aérosol en utilisant une rampe de tension. Enfin, l'aérosol sélectionné est dirigé vers le CNC (Compteur à noyaux de condensation) qui permet de mesurer la concentration numérique.

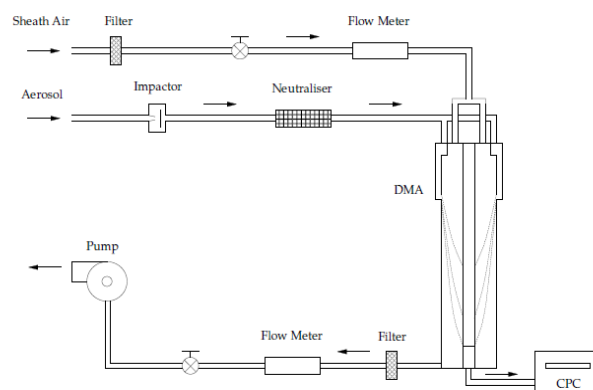


Figure 16 : schéma représentatif du SMPS [BIS-04]₁

Pour la mesure de la distribution en taille d'un aérosol, la tension appliquée à l'électrode centrale est contrôlée, des particules de différentes mobilités électriques sont envoyées vers le CNC qui mesure la concentration pour chaque mobilité. La distribution en taille de l'aérosol peut être déterminée en combinant la concentration mesurée au CNC avec la mobilité moyenne des particules déterminée par la tension appliquée pour chaque pas de scan. Pour avoir des mesures fiables avec le SMPS (de TSI), le temps nécessaire pour la mesure sur toute la gamme de l'aérosol est de l'ordre de la minute.

b. Electrical Aerosol Analyser

Connu d'abord sous le nom de Whitby Aérosol Analyser (WAA), car il est développé par Whitby et Clark en 1966 [WHI-66]. Il est basé sur le même principe que le SMPS. Il existe cependant deux différences majeures entre ces deux instruments :

Le premier point est que l'aérosol est chargé par un nuage d'ions unipolaire produit par une décharge couronne fil. Le second point, c'est que le détecteur n'est pas optique mais électrique. Les particules chargées sortent de la zone de classification via une fente et sont

dirigées vers une cage de faraday. Le courant est alors mesuré pour différentes tensions appliquée à l'électrode (correspondant à une mobilité donnée).

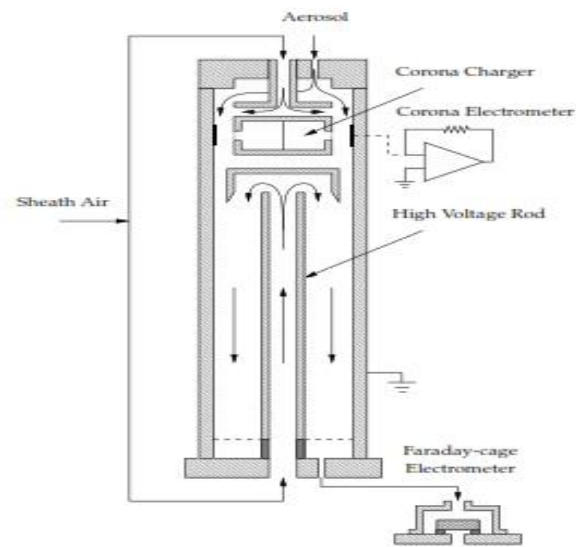


Figure 17 : schéma représentatif de l'EAA [BIS-04]₁

Ces courants mesurés sont ensuite convertis en concentrations pour construire la distribution de taille. Comme pour le SMPS, le EAA nécessite un temps de mesure important (2 à 3 min).

c. Electrical Aerosol Spectrometer

L'Electrical Aerosol Spectrometer" (EAS) permet de mesurer la distribution en taille entre 10 nm à 10 μm [TAM-98].

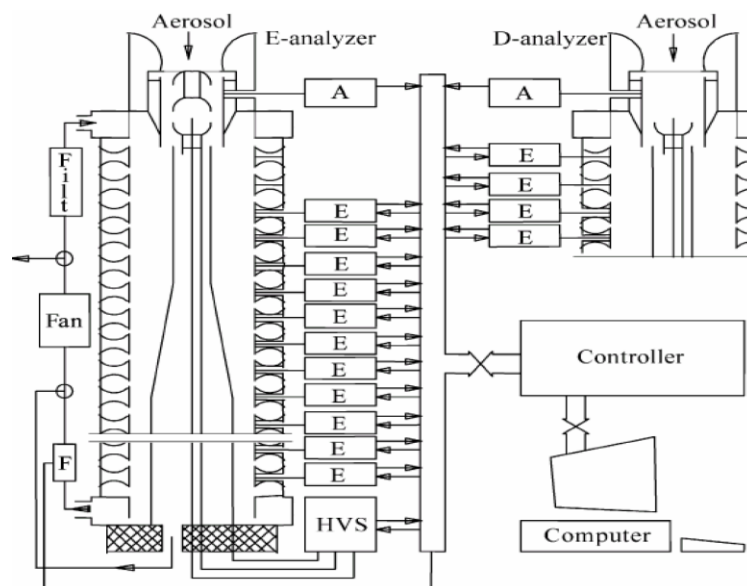


Figure 18 : schéma représentatif de l'EAS [TAM-98]

Il consiste en deux analyseurs de mobilités en parallèles et opérant l'un avec la charge par diffusion pour les particules de tailles inférieures à $< 1 \mu\text{m}$ et l'autre avec la charge par champ pour les tailles allant de 1 à $10 \mu\text{m}$. Vu la large gamme de taille couverte par cet instrument, sa résolution est plus faible comparée à celle du SMPS dans la gamme submicronique.

Les particules sont injectées à proximité des électrodes internes et déviées vers les électrodes externes de chacune des deux colonnes. Elles sont ensuite collectées sur 32 électrodes connectées à des électromètres. Mesurés sur chacune de 32 électrodes, les courants de particules sont utilisés pour remonter à la concentration via un algorithme d'inversion et donne ainsi la distribution en taille finale. Le temps de réponse est d'environ 1 s mais atteint 5 s pour une mesure statistiquement significative pour les faibles concentrations ($< 10^4 \text{ cm}^{-3}$).

d. Fast Aérosol Spectrometer

Dans cet appareil, l'aérosol est exposé une centaine de millisecondes à une lampe UV. Il est donc chargé photo-électriquement. Les particules sont ensuite séparées selon leurs mobilités électriques. Une série d'électromètres situés le long de l'électrode externe servent à mesurer le courant de particules (cf. Figure 19).

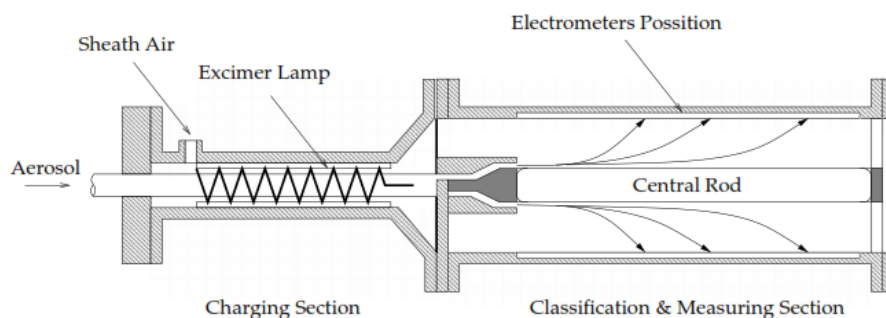


Figure 19 : schéma représentatif du FAS [GRA-01]

Le nombre des anneaux électromètres, correspondant au nombre de gammes, dépend donc en plus du débit et de la concentration de l'aérosol et du niveau de charge atteint, de la sensibilité des électromètres.

e. Differential Mobility Spectrometer

Composé de trois parties : chargeur par diffusion, classificateur et électromètres pour la détection et la mesure. Son design est inspiré du FAS. Cependant, la majeure modification faite est que la lampe UV est changée par un chargeur à décharge couronne fil qui est similaire au chargeur d'Hewitt (cf. §. I.3.8.1.a).

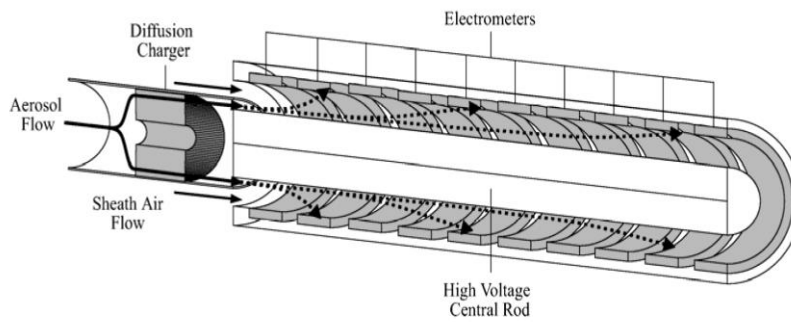


Figure 20 : schéma représentatif du DMS [BIS-04]₂

f. Autres instruments

D'autres techniques à part celle basée sur la mobilité électrique pour la séparation sont utilisées pour mesurer la distribution en taille d'un aérosol sub-micronique.

- *Electrical Low Pressure Impactor (ELPI)*: Il combine la détection électrique et la classification selon le diamètre électrodynamique. Il opère dans la gamme de taille 0,03 à 10 μm . L'aérosol est donc chargé puis séparé sur 12 étages. Le temps de réponse de cet instrument est de 2 s.

- *Le Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor (MOUDI)*: Comme pour l'ELPI, cet instrument utilise la classification selon le diamètre électrodynamique dans la gamme de taille 5 à 10 μm (modifiable selon les conditions opératoires) [MAR-91]. Les particules de taille inférieure à 10 nm peuvent être classées par le Nano-MOUDI qui utilise la même technique mais fonctionne à basse pression.

- *Batteries de diffusion (DBs)*: Les batteries de diffusion séparent les particules selon leur coefficient de diffusion en traversent des grilles successives, seule les particules les plus grosses parviennent à pénétrer les étages successifs. Ce principe est à la base utilisé par Townsend [TOW-99] pour évaluer les propriétés d'ions. Généralement, un CNC est combiné aux batteries de diffusion pour avoir la distribution en taille. Les batteries de diffusion sont souvent utilisées pour la mesure de particules de taille inférieure à 100 nm.

- *Time of Flight Mass Spectrometers*: Cet instrument classe les particules avant la charge et la détection, en utilisant différents composants: l'aérosol passe d'abord dans un "cyclone" pour éliminer les particules de diamètre supérieur à 2,5 μm . puis une centrifugeuse qui permet d'éliminer les particules de diamètre supérieur à 200 nm. Finalement, l'aérosol passe dans une batterie de diffusion. Sur chaque gamme sélectionnée, l'aérosol est chargé et mesuré.

Tableau 2 : caractéristiques des granulomètres aérosol

Principe de fonctionnement	Instruments	Gamme de taille (nm)	Gamme de concentration (cm ⁻³)	Type de chargeur	Type de détection	Temps de réponse
Mobilité électrique	DMS	5-1000	1·10 ³ - 4·10 ⁷	Unipolaire - DC	Électromètres	200 ms
	EAA	4-750	10 ⁵ - 5·10 ⁹ à 5- 25·10 ⁴	Unipolaire - DC	Électromètres	2-3 min
	EAS	10-10000	10 ² - 10 ⁵ à 2·10 ⁻² - 5·10 ¹	Unipolaire - DC et FC	Électromètres	< 1 s
	FAS	5-200	10 ⁴ - 10 ⁸	Photoélectrique	Électromètres	100 ms
	SMPS	3-1000	1 - 10 ⁸	Bipolaire - DC	OC	30-120 s
	EEPS	5,6-560	-	Unipolaire - DC	Électromètres	1,5-2 s
Diffusion	DB	1-200	Pas applicable	Unipolaire - DC	Électromètres / OC	> 20 s
	Nano Met	1-2500	-	Unipolaire – DC et photoélectrique	Électromètres	1 s
Diamètre aérodynamique	ELPI	30-10000	10 ² - 10 ⁸ à 10 ⁻¹ - 10 ⁴	Unipolaire - DC	Électromètres	2 s
	MOUDI	52-10000	Pas applicable	-	Gravimétrique	pas temps réel
	ATOFMS	300-3000	Mesure à l'unité	-	Électromètres	-
Surface active	EAD	10-1000	-	-	Électromètres	< 1 s
	Epiph / er	5-1000	-	-	Détecteur de Radiations	2 min

Une large gamme d'instrument de mesure de la distribution en taille d'aérosol est donc commercialisée. Le choix de l'instrument de mesure doit être fait selon gamme de taille de l'aérosol à mesurer, sa concentration la résolution du spectre requise ainsi que le temps de réponse voulu. Le Tableau 2 donne les spécificités des instruments de mesures existants (ceux cités ci-dessus et ceux qui ne sont pas cités). Aux vues de cette comparaison, il semble incontournable d'utiliser une méthode de détection basée sur la charge des particules qui assurent les temps de réponse les plus courts sur toute la gamme de taille. En effet, la détection optique n'est valide qu'au-delà de 200 nm. En deca, un grossissement des particules par condensation hétérogène est nécessaire (e.g. le CNC cf. ANNEXE 2 : PRESENTATION DU COMPTEUR A NOYAUX DE CONDENSATION) [HIN-82]). Cette étape requiert un temps de l'ordre de la seconde [MCM-99].

Une fois chargés, les aérosols peuvent être séparés électrostatiquement.

I.3.7. Charge de l'aérosol

Parmi les différentes méthodes de mesures granulométriques existantes, la méthode de électrique est retenue pour le système de mesure à développer (cf.§.I.3.6.2.d). Cette méthode nécessite la charge de l'aérosol. Pour charger l'aérosol, la charge par collection d'ions s'avère être la plus reproductible et la plus contrôlable (cf.§.I.2.2.4). Ce mécanisme a été étudié théoriquement et expérimentalement depuis environ 100 ans. Il est utilisé dans différentes applications industrielles notamment pour les couches minces et la précipitation électrostatiques [CHE-97] [LAC-03] [WHI-63].

Les différents types de charge peuvent être classés selon la polarité des ions (unipolaire ou bipolaire) ou le mécanisme de charge, charge par diffusion ou charge par champ.

La charge d'aérosol par un nuage ions bipolaires est utilisée pour la neutralisation de l'aérosol. Les particules peuvent acquérir individuellement des charges positives ou négatives ou neutres, la distribution de charge dépend de la taille de l'aérosol [HIN-82]. Seule une fraction de l'aérosol neutralisé peut donc être mesurée électriquement. La charge bipolaire est donc exclue.

Pour limiter les pertes d'aérosols, qui dépendent de sa taille, la charge par diffusion d'ions en post-décharge est choisie. Cependant, selon l'intensité du champ en post-décharge et la taille de l'aérosol le cas de mécanisme de charge mixte peut avoir lieu [LIU-78]

Dans cette partie, un bref aperçu du mécanisme de charge par champ est donné. Ensuite, les mécanismes et les différentes lois de charge par diffusion sont exposés.

I.3.7.1. Charge par champ

Dans le mécanisme de charge par champ, les particules sont chargées dans un champ électrique appliqué qui, le plus souvent, est responsable de la production des ions. La particule déforme le champ et une partie des lignes de champ aboutissent sur cette dernière. Les ions suivent les lignes de champ électrique (ce mouvement d'ensemble se superpose à l'agitation thermique isotrope) et entrent en collision avec les particules placées dans ces lignes de champ. La Figure 21 représente les lignes de champ autour d'une particule pour la charge par champ (approche mise en place par Pauthenier et al 1932 [PAU-32]). Plus la particule se charge et moins la région de charge est grande. En « C », la particule a atteint sa charge à saturation n_s , n_p ne peut augmenter que par le mécanisme de charge par diffusion. En effet, il n'y a plus de lignes de champ qui convergent vers l'ion.

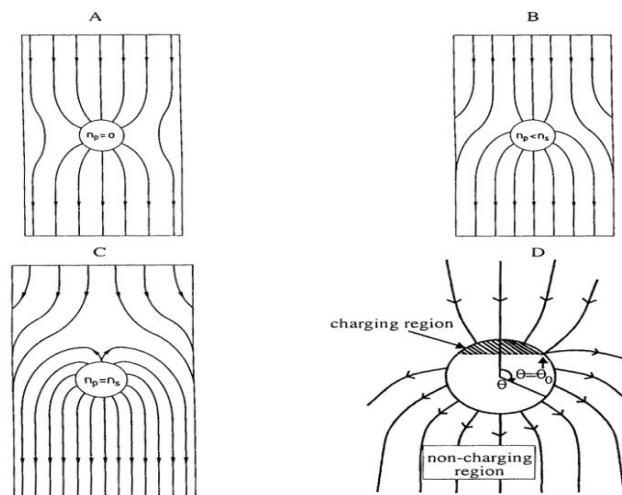


Figure 21 : lignes de champ électrique au voisinage d'une particule. A : $n_p = 0$; B : $n_p < n_s$; C : $n_p = n_s$; D : définition de l'angle limite θ_0

La loi de charge par champ classique décrite ci-dessus est applicable pour des particules de taille supérieure à quelques centaines de nanomètres lorsque le champ électrique est suffisamment fort (de l'ordre de 10^5 V/m) [SMI-75].

Le nombre de charges par particule est proportionnel au carré du diamètre. Il est le plus efficace pour charger les particules de taille supérieure à 100 nm et pendant des temps courts (<100 ms). Cependant, ce mécanisme de charge engendre des pertes importantes de l'aérosol chargé, donc une perte de l'information de l'aérosol à caractériser. Particulièrement quand la

concentration de l'aérosol est basse, ce qui est le cas de l'étude (aérosol atmosphérique $N_p=10^3-10^5 \text{ cm}^{-3}$). En effet, les particules chargées suivent les lignes de champ pour être collectées aux parois (principe des électrofiltres). Le champ qui charge l'aérosol est aussi responsable de ces pertes. De plus, l'accumulation des particules collectées sur les électrodes conduit à la déstabilisation de la décharge ainsi qu'à la modification de la composition de l'air et donc des conditions de charge.

La charge par diffusion permet de limiter considérablement ces effets, ce mécanisme est donc le plus utilisé pour la mesure.

I.3.7.2. Charge par diffusion

Dans un nuage d'ions et en absence de champ électrique, les particules sont chargées grâce au mouvement brownien entre les ions et les particules : ce mécanisme est appelé mécanisme de charge par diffusion et ne requière pas un champ électrique externe. En première approximation, la charge par diffusion ne dépend pas du matériau des particules. L'accumulation des charges sur les particules produit un champ électrique qui tend à repousser les ions. Au fur et à mesure que la charge augmente, de moins en moins d'ions possèdent l'énergie suffisante pour vaincre les forces de répulsions électrostatiques. La vitesse de charge tend alors à s'annuler, mais n'atteint jamais zéro car la distribution de Boltzmann des vitesses ne possède pas de limite supérieure [HIN-82].

a. Modèles développés

Les premiers modèles ont été développés pour décrire le régime continu ($K_{ni} = d_p/2/\lambda_i \ll 1$, avec λ_i le libre parcours moyen des ions). La formule de White est la première qui décrit la charge par diffusion en régime moléculaire ($K_{ni} \gg 1$). Pour décrire la distribution des ions autour de la particule, ces modèles sont basés sur l'équation de Boltzmann.

D'autres auteurs proposent des modèles plus ou moins complexes (Natanson ([NAT-60], Gentry [GEN-72], Lushivkov et Kulmala [LUS-05]). Malgré les différents niveaux de complexité, ces modèles donnent la même prédiction pour la charge [MAR-06]. Fuchs développe le premier modèle sur la charge par diffusion en régime de transition sur le concept de la sphère limite ($K_{ni} \approx 1$). Dans la littérature, le régime de transition reste valide dans la gamme ($0,1 < K_{ni} < 10$). Le modèle Fuchs a été validé par différents travaux expérimentaux (Adachi, Rieschel et Biskos [ADA-] [REI-88] [BIS-04] et [BIS-04]), il est considéré comme l'un des meilleurs modèles pour la charge des particules de diamètre $> 30 \text{ nm}$ (à pression

atmosphérique). Pour les diamètres < 30 nm le modèle sous-estime la charge. D'autres modèles (BGK-modèle) donnent de meilleures estimations pour la charge dans cette gamme de taille. Malgré ces progrès, de plus en plus d'efforts sont fournis pour mieux décrire la charge en régime de transition. Deux exemples des lois de charge (White et Fuchs) sont donnés dans ce qui suit. Ces lois permettent d'établir la distribution de charge de l'aérosol.

b. Modèle de White

Dans une densité d'ions N_i , le flux d'ions ϕ traversant une surface plane unitaire de rayon R peut être calculé par la formule donnée par White [WHI-51] :

$$\phi = \frac{\pi R^2 c_i}{2} N_i$$

Où : R est le rayon de la particule, c_i la vitesse d'agitation thermique des ions et N_i la densité d'ions dans le milieu. Si la particule est chargée n_p fois, le potentiel créé par ces charges va modifier la densité d'ions au voisinage de la particule. Il convient de tenir compte de cet effet pour décrire l'évolution de la charge de la particule dans le temps. Le potentiel créé par la particule portant n_p charges est donné par :

$$V(r) = \frac{n_p(t)e}{4\pi\epsilon_0 r}$$

Où : r est la distance au centre de la particule. En supposant que la distribution d'ions suit une distribution de Boltzmann, la distribution d'ions autour de la particule sera donc donnée par ($N_i = N_0$ en $r = \infty$):

$$N_i(r) = N_0 \exp\left(-\frac{eV(r)}{k_B T}\right) = N_0 \exp\left(-\frac{n_p(t)e^2}{4\pi\epsilon_0 r k_B T}\right)$$

En faisant l'hypothèse que tous les ions qui rentrent en collision confèrent leur charge électrique (le processus mis en œuvre pour la charge ionique est un échange de charge sans collection réelle de l'ion gazeux sur la particule), on peut écrire que le flux d'ions à la surface de la particule est égal à la variation temporelle du nombre de charge :

$$\frac{dn_p(t)}{dt} = \phi$$

Après intégration, on obtient la loi de charge par diffusion de White. Si la particule est initialement neutre, la charge acquise au bout d'un temps τ est donnée par :

$$n_p(t) = \left(\frac{4\pi\epsilon_0 R_p k_B T}{e^2}\right) \ln\left(1 + \frac{e^2 c_i R_p N_i t}{4\epsilon_0 k_B T}\right)$$

Le niveau de charge des particules dépend donc de la taille de la particule (diamètre d_p), ainsi que du produit $N_i.t$, de la température du gaz T , des propriétés des ions (au travers vitesse moyenne d'agitation thermique des ions c_i en m.s^{-1}).

Cette équation est valable pour des particules de diamètre allant de 0,1 à 2 μm et pour des produits $N_i.t > 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ [HIN-82].

La Figure 22 donne le nombre de charge moyen par particule en fonction du produit $N_i.t$ et pour différents diamètres de particules (0,01 ; 1 et 1 μm) calculé avec la loi de White.

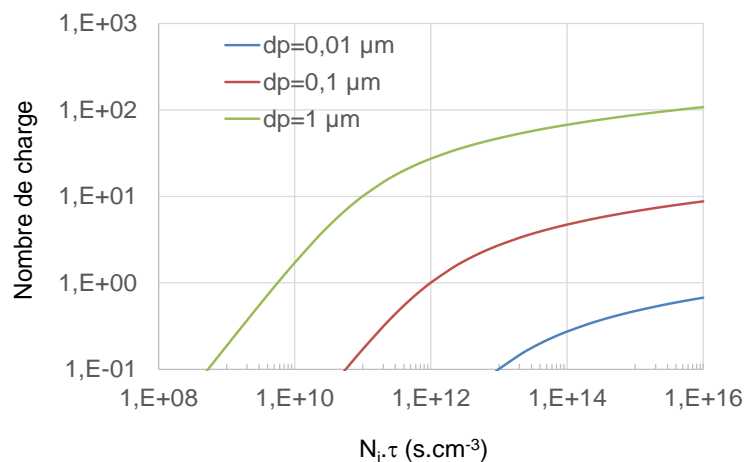


Figure 22 : charge par diffusion : Nombre de charges en fonction de $N_i.t$ pour différents diamètres calculé avec la loi de White

Il est important de noter que même en présence de champ électrique, le mécanisme de charge par diffusion est prédominant pour les particules de diamètre inférieur à 0,2 μm .

c. Modèle Fuchs

La loi de Boltzmann est applicable aux états d'équilibre. Or, les interactions entre les ions et les particules sont des processus d'état stationnaire. Fuchs considéra ce problème en traitant le flux d'ions à travers une particule d'aérosol sphérique en utilisant la méthode dite de la «sphère limite» introduite initialement par Arendt et al. [ARE-26].

La théorie de la sphère limite suppose deux régions séparées par une sphère imaginaire concentrique à la particule. À l'extérieur de la sphère, le mouvement ionique est décrit par les équations de diffusion-mobilité relatives au régime continu. Les ions qui émergent de la sphère et qui se déplacent à l'intérieur sont supposés ne pas entrer en collision avec les molécules de gaz, de ce fait la théorie cinétique des gaz peut être appliquée.

Le nombre de collisions entre les ions et les particules dépend de la mobilité des ions, de leur masse, mais aussi du diamètre des particules et du signe des charges élémentaires qu'elles portent.

Régime continu ($K_{ni} < 1$, Fuchs 1943) : à partir de l'équation de diffusion, plusieurs auteurs ont démontré qu'en négligeant la force image, le flux à la surface d'une particule de diamètre d_p s'exprime sous la forme [ARE-25] [PAU-32] [FUC-47]:

$$J = K_E \frac{4\pi D_i N_i n e^2}{kT [\exp\left(K_E \frac{n e^2}{d_p kT}\right) - 1]}$$

Il est possible de démontrer que l'effet de la force image décroît avec la taille des particules pour devenir négligeable au-delà de quelques centaines de nm, la loi est donc bien valide dans le régime continu comme l'ont confirmé expérimentalement plusieurs auteurs dont Liu & Pui (1977) et Kirsch & Zagnit'ko (1981).

Régime de transition ($K_{ni} \sim 1$, Fuchs 1963) : Le taux de collision est quantifié par les coefficients d'attachement ou de combinaison ions/particules qui sont calculés par égalisation des flux ioniques à la surface de la sphère limite. Le flux d'ions à la surface de la particule peut alors s'exprimer sous la forme :

$$j = \frac{\pi \gamma \bar{c}_i \delta^2 N_i \exp\left(-\frac{\phi(\delta)}{kT}\right)}{1 + \exp\left(-\frac{\phi(\delta)}{kT}\right) \frac{\gamma \bar{c}_i \delta^2}{4D_i} \int_{\infty}^{\delta} \frac{1}{r^2} \exp\left(\frac{\phi(r)}{kT}\right) dr}$$

Avec $\phi(\rho)$ le potentiel d'interaction Coulombienne :

$$\phi(r) = \int_r^{\infty} F dr = K_E \left[\frac{n e^2}{r} - \kappa \frac{a^3}{2r^2(r^2 - a^2)} \right]$$

Et δ le rayon de la sphère limite :

$$\delta = \frac{a^3}{\lambda_i^2} \left[\frac{\left(1 + \frac{\lambda_i}{a}\right)^5}{5} - \frac{\left(1 + \frac{\lambda_i^2}{a^2}\right) \left(1 + \frac{\lambda_i}{a}\right)^3}{3} + \frac{2}{15} \left(1 + \frac{\lambda_i^2}{a^2}\right)^{5/2} \right]$$

d. Comparaison des lois

Les lois dans le régime de transition et continu ont été comparées avec une simulation Monté Carlo à pression atmosphérique par Biskos (cf. Figure 23).

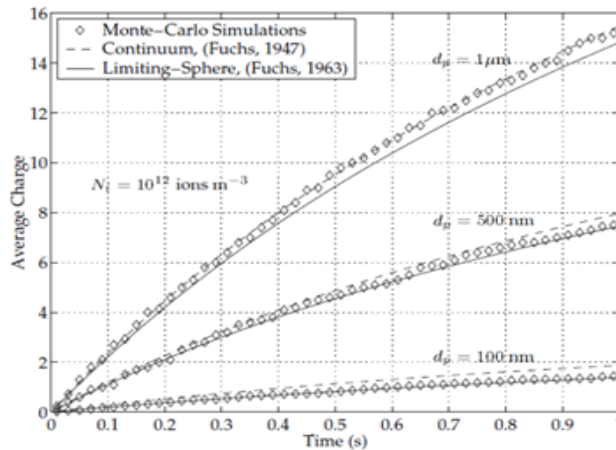


Figure 23 : evolution temporelle du nombre de charge moyen par particule monodispersé pour une densité d'ions de 10^6 cm^{-3} : Simulation Monte-Carlo (symboles ouverts) Fuchs continuum (pointillés) et régime de transition (lignes pleines) [BIS-04].

Ces résultats, comparant théories et modèles, confirment, dans des densités d'ions homogènes, la validité des lois dans chaque régime et permet d'illustrer les écarts attendus quand les lois sont appliquées dans le 'mauvais' régime.

Pour illustrer ces écarts sur toute la gamme de taille, les lois de White et Fuchs sont représentées dans les deux régimes selon la taille des particules pour une pression pour l'étude de 900 mbar proche de celle retenue pour l'étude (cf. Figure 24)

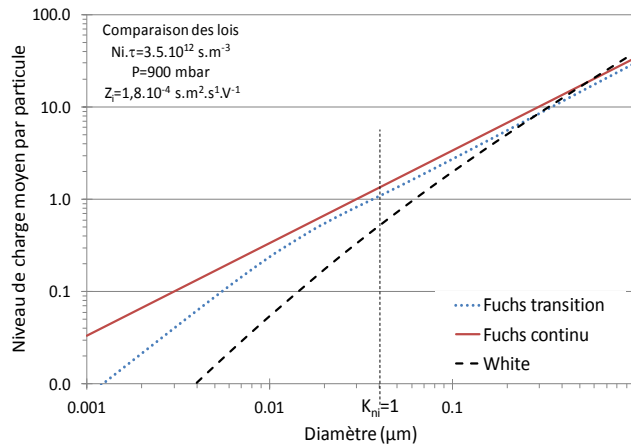


Figure 24 : comparaison des niveaux de charge selon le diamètre, calculés à partir des lois de White Fuchs dans les régimes continus et de transition.

Cette courbe permet de quantifier les écarts attendus entre les différentes lois pour un $N_i \cdot t$ donné. En effet, la loi de White permet des calculs simples, mais la loi de Fuchs dans le régime de transition est plus adaptée à la gamme de taille d'étude.

I.3.7.3. Distribution de charge pour un aérosol monodispersé

La charge de l'aérosol est un phénomène statistique. Les lois de charges donnent une distribution de charge pour un diamètre donné (dN/dq_p) c'est à dire même pour des conditions

de charge identiques (même $N_i.t$) des particules de même diamètre acquièrent une charge différente.

Calculs théorique de la distribution de charge : L'approche la plus utilisée pour résoudre le problème de la charge par diffusion unipolaire est basée sur la théorie "birth-and-death" proposée par Boisdron et Brock (1970) [BOI-70]. L'évolution de la distribution de charge d'un aérosol monodispersé est donnée par la solution du système d'équations :

$$\begin{aligned}\frac{dN_{p,0}}{dt} &= -\beta_0 N_{p,0} N_i, \\ \frac{dN_{p,1}}{dt} &= \beta_0 N_{p,0} N_i - \beta_1 N_{p,1} N_i, \\ &: \\ \frac{dN_{p,n}}{dt} &= \beta_{n-1} N_{p,n-1} N_i - \beta_n N_{p,n} N_i,\end{aligned}$$

Où $N_{p,n}$ est la concentration des particules dont le nombre de charge est n , N_i la concentration d'ions et β_n est le coefficient d'attachement d'ions avec les particules dont le nombre de charges élémentaires est n avec $\beta_n = J_n/N_i$. La solution de ce système d'équation donne la distribution de charge pour des particules de même diamètre et des conditions de charge identiques (même $N_i.t$).

En supposant que à $t=0$ toutes les particules sont neutres, le système ci-dessus peut être résolu en utilisant la transformée de Laplace :

$$N_{p,n} = \begin{cases} \exp(-\beta_n N_i t) & \text{for } n = 0 \\ -\sum_{j=0}^{n-1} k_{j,n-1} \frac{\beta_{n-1}}{\beta_j - \beta_n} [\exp(\beta_j N_i t) - \exp(\beta_n N_i t)] & \text{for } n \neq 0 \end{cases}$$

Avec

$$k_{j,n} = \begin{cases} 1 & \text{for } j = n = 0 \\ -k_{j,n-1} \frac{\beta_{n-1}}{\beta_j - \beta_n} & \text{for } j < n \\ \beta_{n-1} \sum_{j=0}^{n-1} k_{j,n-1} \frac{k_{j,n-1}}{\beta_j - \beta_n} = \sum_{j=0}^{n-1} k_{j,n} & \text{for } j = n \neq 0 \\ 0 & \text{for } j < n \end{cases}$$

Toutefois, nous utiliserons un code numérique qui calcule les coefficients d'attachement et résout le système d'équation différentielle afin de pouvoir éventuellement prendre en compte l'effet d'une charge initiale sur l'aérosol.

I.3.7.4. Notions de charge intrinsèque, charge extrinsèque et charge partielle

a. Charge intrinsèque et extrinsèque

Afin de comparer différents chargeurs d'aérosols dans la gamme nanométrique, les notions de charge intrinsèque et extrinsèque ont été introduites. La *charge extrinsèque* est la charge que possèdent les aérosols en sortie du chargeur (les aérosols perdus par diffusion ou collection électrostatique ne sont pas pris en compte), alors que la *charge intrinsèque* concerne la charge finale de tous les aérosols y compris ceux collectés. Les lois de charge décrivent la charge intrinsèque.

Alonso donne une méthode pour mesurer l'efficacité de charge extrinsèque et évaluer la charge intrinsèque [ALO-06]. L'efficacité de charge *intrinsèque* est définie comme étant la fraction de la concentration des particules chargées sur la concentration des particules entrant dans le chargeur :

$$\varepsilon_i = \frac{N^-}{N_{in}^0}$$

L'efficacité de charge *extrinsèque* est définie comme étant la fraction de la concentration des particules chargées *sortant du chargeur* sur la concentration des particules entrant dans le chargeur :

$$\varepsilon_{ex} = \frac{N_{out}^-}{N_{in}^0}$$

Selon l'application visée, les objectifs diffèrent. Par exemple pour l'étude de la charge des aérosols ou la filtration électrostatique, c'est l'efficacité intrinsèque qui est caractérisée. Pour les applications concernant le conditionnement électrostatique telles que la mesure, la coagulation bipolaire ou le dépôt focalisé c'est l'efficacité extrinsèque qui doit être caractérisée.

b. Charge partielle

Selon les conditions de charge, il existe toujours un diamètre de particule limite à partir duquel seulement une fraction des particules est chargée, l'autre fraction reste alors neutre.

Le nombre de charge moyen peut donc être inférieur à l'unité [ALO-06]. C'est ce qui est appelé la charge partielle. Pour cette raison, la charge pour les particules fines suscite encore

l'intérêt de nombreuses recherches. Même pour les meilleurs chargeurs, les particules de diamètre $d_p \sim 30$ nm ne sont que partiellement chargés [INT-09].

I.3.8. Chargeurs par diffusion unipolaires

Les chargeurs peuvent être classés selon le mécanisme utilisé pour la génération du gaz ionisé en trois types :

- Les chargeurs à décharge couronne
- Les chargeurs radioactifs
- Les chargeurs photoélectriques

La décharge couronne fait partie des techniques les plus utilisées pour produire une concentration d'ions élevée et stable dans le temps [INT-09]. De nombreuses études ont abouti à différents dispositifs ayant plusieurs applications industrielles [HEW-57] [WHI-51] [LUI-67] [PUI-76]. Les différents chargeurs à décharge couronne existants sont passés en revue par Intra et al. [INT-09] [INT-11]. La description des principes de fonctionnement et des détails des caractéristiques physiques de ces chargeurs ont été données. Ces éléments sont repris ici et complétés.

Les chargeurs à décharge couronne existants sont classés selon le mécanisme de charge à savoir les chargeurs par champ et les chargeurs par diffusion. Les performances des chargeurs dépendent de l'efficacité extrinsèque de charge et de leurs stabilités.

Les chargeurs à décharge couronne à diffusion peuvent aussi être divisés en deux grandes familles selon la configuration utilisée.

- Les chargeurs à décharge couronne en configuration fil Les chargeurs à décharge couronne en configuration pointe
- Chargeurs à décharge couronne -fil

I.3.8.1. Chargeur à décharge couronne -fil

Des exemples de chargeurs à décharge couronne en configuration fil sont donnés :

a. Hewitt (1957)

Il est l'un des premiers à avoir fait des études expérimentales sur les chargeurs à décharge couronne par diffusion en configuration fil. Le chargeur est formé d'un cylindre avec un fil concentrique et placé le long de l'axe (cf. Figure 25)

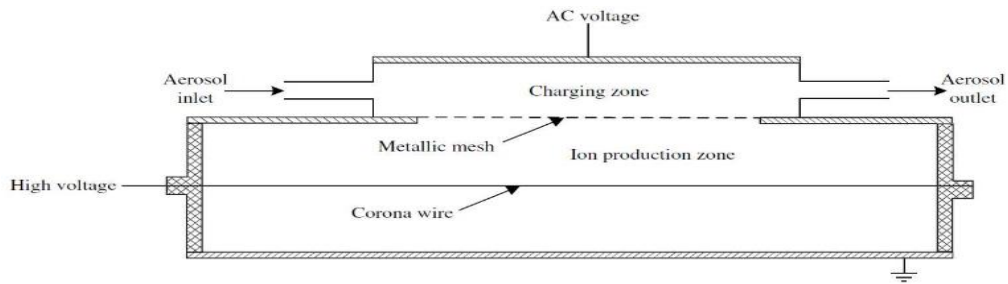


Figure 25 : schéma du chargeur de Hewitt (Hewitt 1957) [INT-09]

Une grille sépare la zone de décharge et la zone de charge où l'aérosol est injecté. Une *tension alternative* est appliquée entre la grille et l'électrode externe du chargeur afin de réduire les pertes des particules aux parois mais aussi permet une meilleure extraction des ions. Les expériences ont été menées pour une gamme de taille allant de 60 nm à 700 nm. Le champ électrique résultant induit des pertes importantes des particules de taille inférieure à 70 nm.

Un chargeur développé par Whitby et Clark (1966) et basé sur le principe du chargeur de Hewitt a été employé pour la charge d'aérosol est utilisé dans l'analyseur électrique d'aérosol (EAA) [WHI-66].

b. Kruis et Fissan

Un autre chargeur développé par Kruis et Fissan qui ont utilisé une configuration à double chargeur (cf. Figure 26) [KRU-01]. La zone de charge est séparée des zones de production des ions à l'aide des grilles à des tensions carrées en opposition de phase et d'une valeur maximale de 600 V. Des ions positifs produits par la décharge couronne du fil en or placé au centre d'un cylindre métallique.

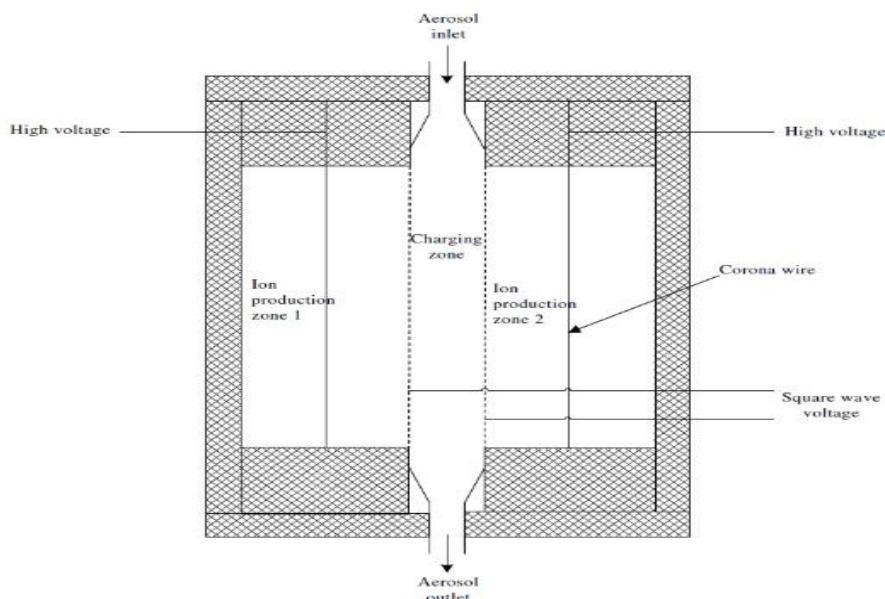


Figure 26 : schéma du double chargeur de Hewitt (Kruis et Fissan)[KRU-01]

Une étude paramétrique de l'optimisation de la charge extrinsèque a montré qu'il existe une longueur optimale de canal de charge pour chaque valeur du débit dans le chargeur ce qui minimise les pertes des particules chargées tout en ayant des produits $N_i.t$ suffisamment élevés et des efficacités de charges importantes : Une efficacité de charge extrinsèque allant jusqu'à 30% pour les particules avec des diamètres de 10 nm peut être atteinte.

c. Liu

Liu a développé un autre chargeur à ions positifs basé sur les mêmes principes que les précédents, contenant plusieurs fils dans la zone de production des ions et opérant à une gamme de pression allant de 0,03 à 0,96 bars. Des tensions alternatives carrées sont appliquées à des fréquences allant de 10-60 Hz. Pour éviter le régime de charge par champ les amplitudes utilisées sont faibles. Ainsi, les mesures de charge montrent une cohérence avec les théories de charge par diffusion.

Des chargeurs similaires ont été développés par Liu et Pui puis par Pui. Le chargeur de Liu et Pui est constitué de deux cylindres métalliques avec un fil en tungstène de 25 μm de diamètre la polarité de la décharge et donc des ions est positive (cf.§. I.2.2.4). Les ions sortent à travers la grille vers le gap annulaire extérieur, ils sont ensuite collectés par le cylindre intérieur : c'est dans ce gap qu'il y a collision entre les ions et les particules.

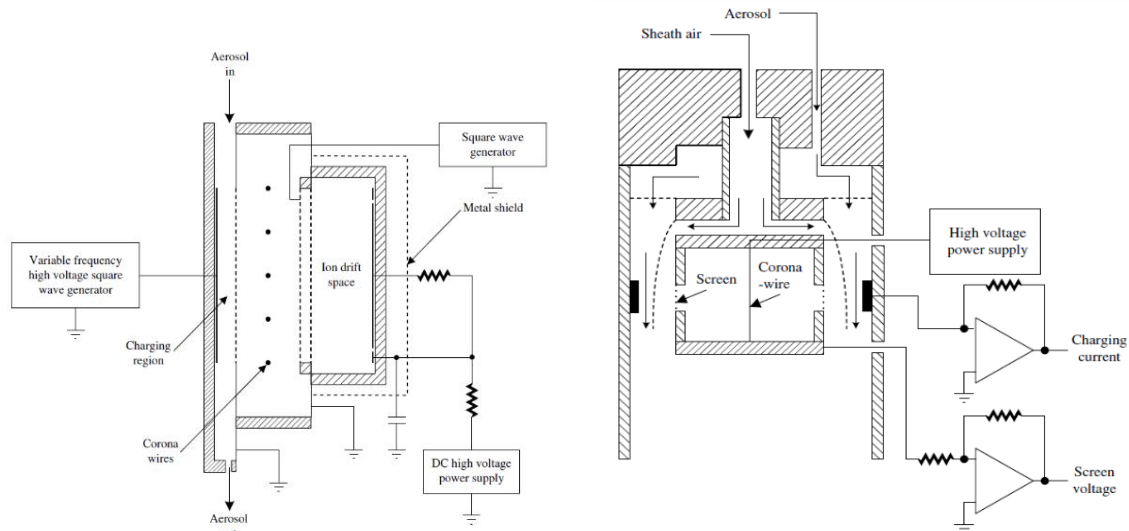


Figure 27 : schéma des chargeurs de (a) Lui (Liu, Intra 2009), (b) Liu et Pui [INT-11]

Le temps de résidence dans ce chargeur est de 0,217 s et le flux total est fixé à 5 L.min⁻¹. Le produit $N_i.t$ nominal est ajustable sur une plage allant de moins de 10⁶ à plus de 3·10⁷ cm³.s⁻¹.

d. Buscher

Buscher a utilisé un chargeur similaire à celui de Hewitt, afin de réduire les pertes des particules fines, il utilise un chargeur alimenté par une tension carrée de 75 à 300 V et des fréquences de 25 à 70 Hz. Les tubes intérieurs pour le mélange aérosol et le gaz porteur sont conçus de telle sorte que le flux des particules dans la zone de charge soit laminaire (cf. Figure 28).

Une décharge couronne de 4,5 kV génère des ions le long des axes des cylindres concentriques. Une tension positive est appliquée au cylindre intérieur, et une grille de largeur 1,17 cm permettent aux ions produits d'interagir avec les particules d'aérosol.

Les particules qui se retrouvent dans la zone de charge sont soumises aux oscillations et ne sont donc pas collectées aux parois.

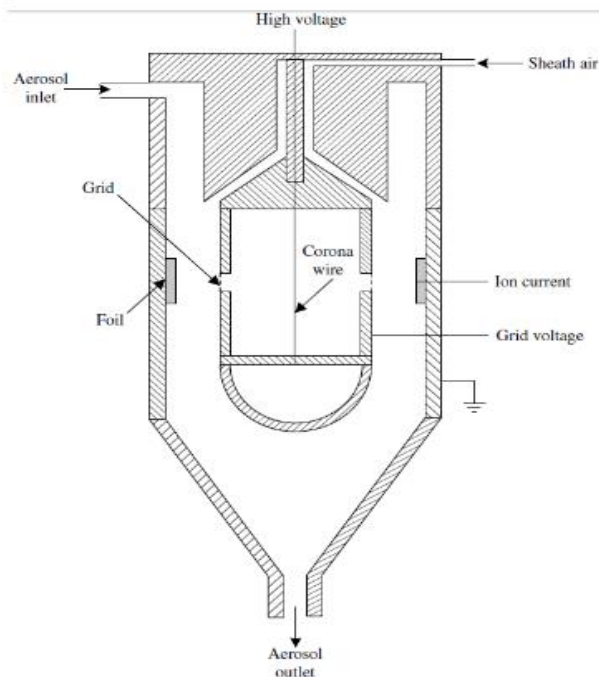


Figure 28 : schéma du chargeur de Buscher [BUS-80]

e. Biskos

Biskos a développé un chargeur composé de deux électrodes concentriques 50 et 74 mm de diamètre [BIS-04] [BIS-05]. Avec un fil de tungstène de 16 μm de diamètre le long de l'axe. Les ions créés dans la zone de décharge migrent vers l'électrode intérieure à cause du champ électrique élevé dans la région. Pour permettre aux ions de se déplacer vers la zone de charge, l'électrode intérieure est une grille métallique. Une tension alternative est appliquée à l'électrode extérieure, l'électrode interne est connectée à la terre.

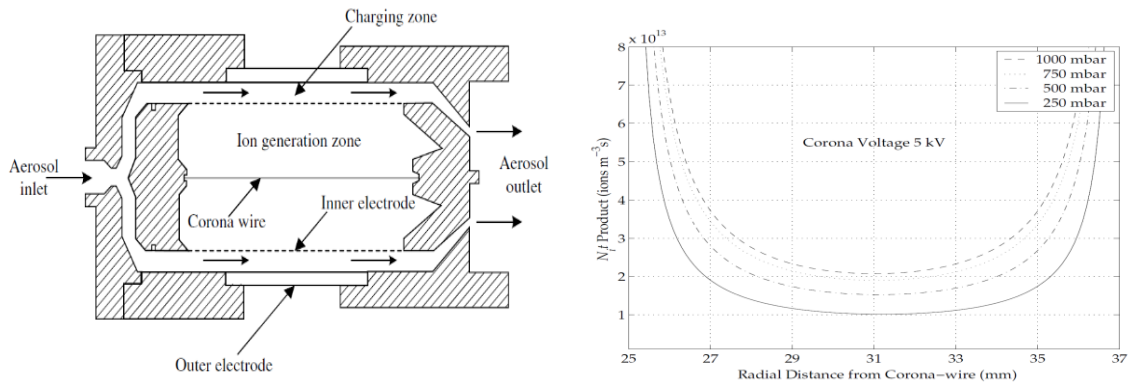


Figure 29 : schéma du chargeur de Biskos et de la distribution des $N_i.t$ selon la position d'injection [BIS-04]

Les densités d'ions dans la zone de charge sont de 10^7 cm^{-3} et quasi-homogènes (moins de 10% d'écart calculé par le modèle. Avec des temps de charge de l'ordre de la seconde, le produit $N_i.t$ est de l'ordre de 10^7 s.cm^{-3} . Néanmoins, le profil de vitesse du gaz induit une distribution des temps de transit qui implique une distribution du produit $N_i.t$ rencontré par les particules selon leur position d'injection.

I.3.8.2. Chargeurs à décharge couronne –pointes

a. Whitby

Le premier à avoir développé un chargeur à décharge couronne en configuration pointe est Whitby [WHI-61]. Ce chargeur est composé d'une pointe de faible rayon de courbure portée à la haute tension, l'électrode de terre est munie d'un orifice qui permet d'extraire les ions produits dans la décharge. L'air pur est ensuite soufflé dans la décharge et ressort de l'orifice en entrainant les ions. Une tension positive, négative ou alternative peut être appliquée pour produire des ions positifs, négatifs ou un mélange des deux respectivement.

L'auteur rapporte que la concentration d'ions produite dépasse 10^{10} cm^{-3} dans la zone de charge un débit d'air pur de 64 L.min^{-1} via un orifice de diamètre 1,59 mm et une pression de 3 bars, la distance inter-électrodes étant de 0,64 à 6,4 mm.

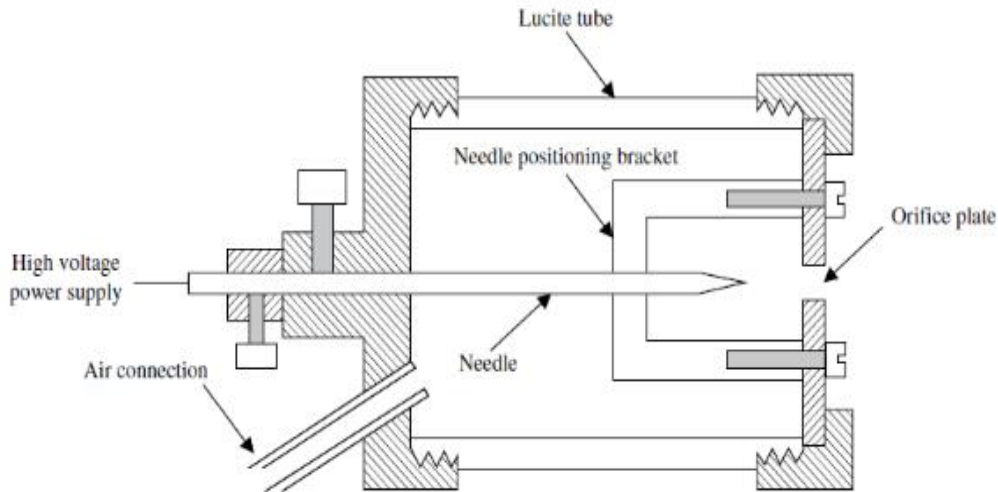


Figure 30 : schéma du chargeur de Whitby [WHI-61]

b. Medved

Un autre chargeur a été proposé plus tard par Medved. Un schéma de ce chargeur est donné par la figure Figure 31 [MED-00].

Ils ont développés un chargeur d'aérosol à jets turbulent. Les ions créés dans la décharge migrent vers la zone de charge via un petit orifice entraînés par l'air pur soufflé.

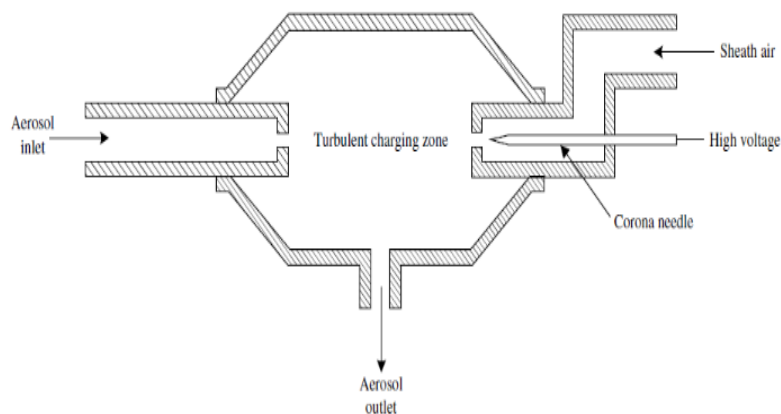


Figure 31: schéma du chargeur de Medved [MED-00]

L'aérosol est injecté dans la zone de charge face à la sortie d'ions ce qui permet de mieux mélanger les ions aux aérosols comparés aux autres chargeurs notamment en configuration fil. Ce chargeur est commercialisé par Electrical Aerosol Detector(EAD).

c. Marquard

Dans des travaux ultérieurs de Marquard et al. [MAR-06], le double chargeur corona en configuration pointe a été développé.

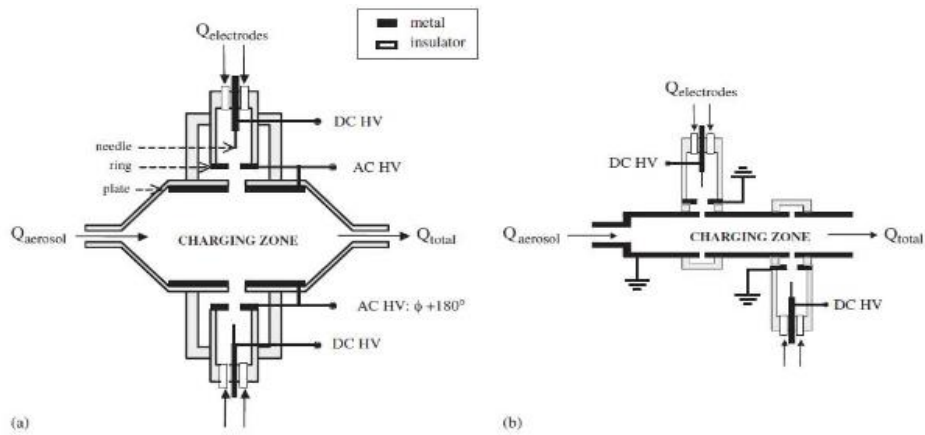


Figure 32 : schéma du double chargeur pointes a) Chargeur Twin Corona b) EAN 581 nébuliseurs.

Les chargeurs sont similaires à celui de Whitby et sont mis en direction opposées, les ions sont injectés dans la zone de charge perpendiculairement au flux d'aérosol. L'extraction des charges est améliorée grâce à la tension alternative appliquée aux anneaux. Le temps de résidence est de 3 à 10 s.

d. Park

Park et al. ont développé un chargeur composé d'une zone de décharge couronne, un piège à ions, et trois canaux avec différents diamètres afin de varier les temps de résidences avec une distribution en taille en log-normal [PAR-07]. Une pointe en tungstène de 25 μm de rayon de courbure est portée à la haute tension, la surface de l'électrode de terre est de 0,005 m^2 (cf. Figure 33).

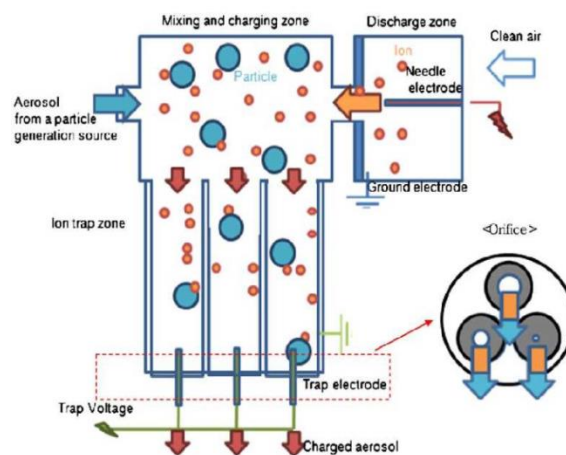


Figure 33 : schéma du chargeur multi canaux [PAR-07]

La distance inter-électrodes est de 3 mm. Le volume de la zone de charge est de 95,5 cm^3 . Le débit d'aérosol et de l'air pur est de 5 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ chacun. Ces deux flux sont opposés. L'amplitude de la tension positive appliquée à la pointe varie de 3 à 6 kV.

e. Unger

Unger et al. ont utilisé un chargeur en configuration pointe et en polarité négative en injectant les flux d'aérosol de façon perpendiculaire aux ions.

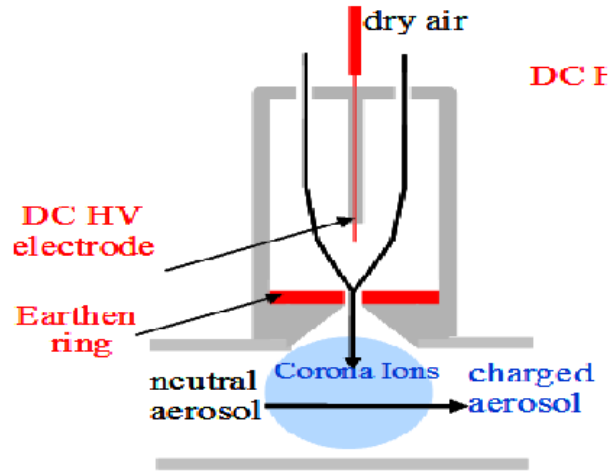


Figure 34 : schéma chargeur post-corona unipolaire [UNG-01].

Des densités d'ions " N_i " d'environ 10^8 à $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ et des temps de résidence de 0,2-1,2 s. Ce chargeur permet de charger des particules de 400 nm à plus de 40 charges. Ce travail met en évidence l'effet de " N_i^{0n} " sur la charge en étudiant la position d'injection par rapport à l'orifice.

f. Han

Un chargeur utilisant des ioniseurs à fibre de carbone a été développé par B.Han et al. [HAN-08]. Ce chargeur permet d'obtenir une charge efficace des particules fines avec l'avantage majeur d'un taux d'ozone négligeable ($< 1 \text{ ppmv}$).

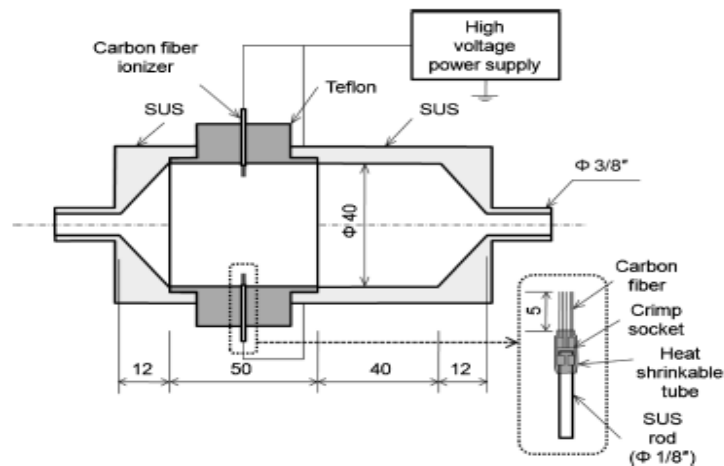


Figure 35 : schéma du chargeur à ioniseur en fibre de carbone de Han [HAN-08]

Le chargeur est constitué de deux ioniseurs positionnés face-à-face. Chaque ioniseur est constitué de 300 fibres de carbone de diamètre allant de 5 à 10 μm et alimentées par une tension de 2,3 à 4 kV.

Il a été montré que le chargeur à fibre de carbone permet de charger les particules fines avec des efficacités de charge comparables à celles des chargeurs corona. C'est cette technique qui permet de diminuer la quantité d'ozone généré, ce qui est fortement désiré dans les applications nécessitant l'étude de la composition de l'aérosol atmosphérique. En effet, un aérosol atmosphérique peut être riche en composés organiques et qui sont susceptibles d'être dégradés par réaction avec l'ozone.

g. Vivas

Pour faciliter la séparation en taille par analyse de mobilité, il est nécessaire de maîtriser la distribution de charge de l'aérosol (cf. §.II.2.3). En pratique, il est fortement recommandé d'avoir une fraction élevée de particules uni-chargées dans le but de faciliter la conversion mobilité-diamètre. Or, en général le nombre de charge acquis croît en fonction du diamètre des particules. Des particules de diamètre supérieur à 20 nm peuvent acquérir plusieurs charges. Le chargeur unipolaire de Büscher [BUS-94] a été redimensionné et les conditions de fonctionnement ont été optimisées par Vivas [VIV-08] dans le but de réduire les charges multiples pour les particules submicroniques. Une tension pulsée d'amplitude et de durée variables a été appliquée à l'électrode active afin de contrôler la concentration d'ions dans la zone de charge. Le choix approprié de la durée des pulsations a permis de réduire les charges multiples à un niveau similaire aux chargeurs bipolaires tout en ayant des efficacités de charge (charge unique) élevées.

h. Li

Un chargeur proposé par Li et al. [LI-10] est composé d'un tube entourant la pointe en tungstène est couvert sur l'extrémité par un écran métallique.

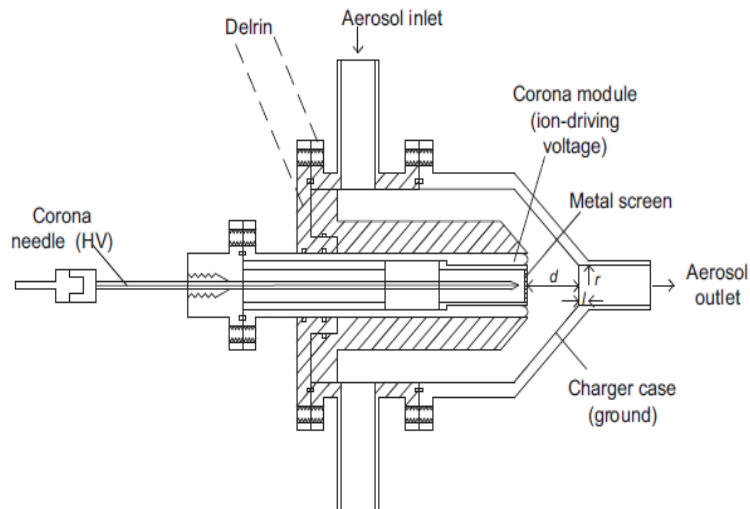


Figure 36 : schéma du chargeur de Li [LI-11]

Les parois sont alimentées par une tension (plus faible que celle de la pointe) pour augmenter la fraction d'ions extraits vers la zone de mélange. La densité d'ions dans la zone de mélange peut ainsi être contrôlée avec les tensions appliquées à la pointe et aux parois. La zone de charge est dimensionnée de façon à limiter le temps de séjour des particules chargées dans la zone de mélange et donc limiter les pertes. Dans ces conditions ce chargeur permet d'atteindre des efficacités extrinsèques élevées.

I.3.8.3. Comparaison des chargeurs

La caractérisation des chargeurs est une procédure nécessaire qui permet entre autre de comparer différents chargeurs. Cette caractérisation peut être faite selon deux familles d'informations : (i) le produit $N_i.t$ et (ii) les pertes dans le chargeur.

Alonso [ALO-06], a proposé une méthodologie permettant de mesurer différents paramètres nécessaires à l'évaluation des performances du chargeur. Ces paramètres sont l'efficacité de charge intrinsèque et extrinsèque ainsi que les pertes électrostatiques et les pertes par diffusion. Le Tableau 3 compare les différents chargeurs par diffusion décrits ci-dessus.

Le mélange ions-aérosol représente par ailleurs est un critère important pour la charge. En effet, le niveau de charge de l'aérosol dépend en premier lieu de la taille de l'aérosol et du produit $N_i.t$.

Tableau 3 : comparaison des conditions de fonctionnement des chargeurs par diffusion. * P= perpendiculaire, O= opposé, A= axial (Intra 2009)

Reference	Type de l'électrode active	Dc l'élec. active (μm)	Dc l'élec. passive (mm)	Aerosol flow rate ($\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$)	Debit "Sheath air" ($\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$)	Tension appliquée (kV)	Polarité	Produit $N_i t$ ($\times 10^7 \text{ s}\cdot\text{cm}^{-3}$)	direction de l'Aérosol/ ion	Efficacité de charge extrinsèque
Hewitt	fil	-	-	-	No	-	-	-	P	-
Liu	fil	25	-	4	1	-	+	0,1-3	P	0,013(6nm)
Buscher	fil	-	30	2	0.5	4.5	+	1,1	P	0,04 (5 nm)
Kruis	fil	25	16	-	No	-	+	1-8	P	0,3 (10 nm)
Biskos	fil	16	74	5	No	2-9	+	3	P	0.6 (20 nm)
Intra	fil	300	28	1-5	No	5-10	+	1,5-4	P	-
Whitby	pointe	-	-	70	No	0-9	+/-	-	P	-
Medved	pointe	-	-	-	-	-	+	-	O	0,4 (10 nm)
Park	pointe	0.25	-	5	5	3.5-5	+	1-7	P	0,3 (24 nm)
Unger	pointe	50	20	2-7	2	3-15	-	0,1-1	P	40(400 nm)
Han	Fibres	5-10	-	1.5	No	2.3-4	+	0,4-1	P	0,6 (20 nm)
LPGP	pointe	-	-	2	2	2-3	-	0,3-3	A	1 (30 nm)
LPGP ¹	pointe	50	25	6-30	6-30	3-7	-	-	P	-

La gamme de $N_i t$ moyen est de 10^6 à $10^8 \text{ s}\cdot\text{cm}^{-3}$. Ces valeurs sont des moyennes qu'il faut utiliser avec précaution en raison de la difficulté expérimentale à évaluer les $N_i t$ réel rencontrés par les particules. En effet, le $N_i t$ dépend de la densité d'ions c'est-à-dire de l'intensité et profil d'ion (homogène ou hétérogène), et de la nature du mélange laminaire ou turbulent qui définit le temps de séjour des particules.

I.4. Conclusions bibliographiques

Les instruments de mesure dont les spécifications répondent le mieux au cahier des charges (aucun des appareils recensé ne le remplit) sont basés sur trois étapes à savoir : la charge de l'aérosol, la séparation mobilimétrique et la mesure du courant de particules chargées sur chaque gamme de mobilité électrique. En effet, les mesures basées sur les méthodes de détection électrique et optiques permettent une mesure avec un temps de réponse de 100 ms.

Cependant, pour des particules de diamètre inférieur à 200 nm, la détection optique nécessite un pré-grossissement par nucléation homogène qui augmente le temps de réponse au-delà des 100 ms. Ainsi, seule la détection électrique est adaptée. Ce principe est retenu pour développer le système de mesure de concentration d'aérosol atmosphérique à 10 Hz (concentration 10^3 - 10^5 cm^{-3} diamètre entre 10 à 1000 nm).

Ainsi, nous avons choisi d'utiliser des décharges couronnes pour produire les ions qui servent à charger l'aérosol. En effet, les décharges couronnes sont utilisées dans différents chargeurs en raison de leurs simplicité de mise en œuvre, leurs robustesse mais aussi parce qu'elles permettent de produire une concentration d'ions élevée et stable dans le temps [INT-11]. Dans la zone de décharge, où le champ électrique est supérieur à 10^5 V/m, le mécanisme de charge par champ est dominant (notamment pour les particules de diamètre > 100 nm), ce mécanisme est exclu en raison des pertes d'aérosols chargées sur les électrodes qui conduisent en plus à la déstabilisation de la décharge. Nous choisissons donc de charger l'aérosol par diffusion d'ions en post-décharge ($E < 10^5$ V/m). La loi de charge par diffusion utilisée pour les calculs des niveaux de charge, dans la gamme de diamètre de l'étude (10-1000 nm), est la loi de Fuchs.

Pour la charge par diffusion, le nombre moyen de charge acquis par particule q_p dépend au premier ordre du diamètre de la particule et du produit $N_i.t$ (N_i est la densité d'ions moyenne et t le temps de charge). Dans les chargeurs recensés, les produits $N_i.t$ de plusieurs 10^6 s.cm^{-3} sont atteints dans des densités d'ions homogènes. Dans ce cas, les densités d'ions maximales atteintes sont de l'ordre de quelques 10^6 cm^{-3} avec un temps de charge est de l'ordre de la seconde. Dans notre cas, le temps de transit de l'aérosol est limité à 100 ms. Ainsi, une densité moyenne d'ions de l'ordre de 10^8 cm^{-3} est requise, ce qui implique une hétérogénéité spatiale des densités d'ions.

Les sources d'ions à décharge couronne avec une géométrie de type pointe-trou permettent d'atteindre des densités d'ions initiales dans le chargeur de l'ordre de 10^9 cm^{-3} [WHI-61]. Afin d'optimiser la source d'ions et le chargeur (augmenter le produit $N_i.t$ et donc la charge des particules tout en limitant les pertes d'aérosol), il faut contrôler le transport électrohydrodynamique (EHD) des ions aussi bien dans la décharge que dans l'orifice d'extraction et dans le chargeur. Dans une densité de charge unipolaire, le transport EHD des ions est contrôlé par les répulsions électrostatiques, comme formalisé par Whitby [WHI-61]. Par analogie, il est donc possible d'étudier le transport d'ions dans la source d'ions et dans le chargeur (ainsi que des particules chargées dans le chargeur) en s'appuyant sur ce formalisme.

II. STRATEGIE DE L'ETUDE

Cette étude résulte d'une sollicitation pour mesurer l'évolution temporelle de la concentration d'aérosol atmosphérique entre 10^3 et 10^5 cm^{-3} , de particules de 10 à 1000 nm, sur au moins deux gammes de diamètre autour de 100 nm, à 10 Hz. Ce cahier des charges est traduit en contraintes métrologiques, puis en critère de choix du chargeur d'aérosol, objet de ce travail.

II.1. Principe

L'étude bibliographique a permis de définir la stratégie pour développer l'instrument et les conclusions sont résumées ici en termes de principe de mesure et des moyens à mettre en œuvre (cf. Figure 37). Pour atteindre une fréquence de mesure de 10 Hz, seule la détection électrique est adaptée. Une décharge couronne est alors utilisée pour produire les ions et charger l'aérosol. Les ions sont soufflés vers la post-décharge via un orifice percé dans le plan de masse, puis mélangés aux aérosols. Un piège à ions collecte les ions résiduels en sortie du chargeur. Les courants de particules chargées sont mesurés sur chaque plateau de mobilité correspondant, si la relation mobilité-diamètre est bijective, aux différentes gammes de diamètre (cf.§.2.3). Il est alors possible de remonter, via un algorithme d'inversion de données, du courant de particules chargées par gamme de mobilité à la concentration de l'aérosol par gamme de taille.

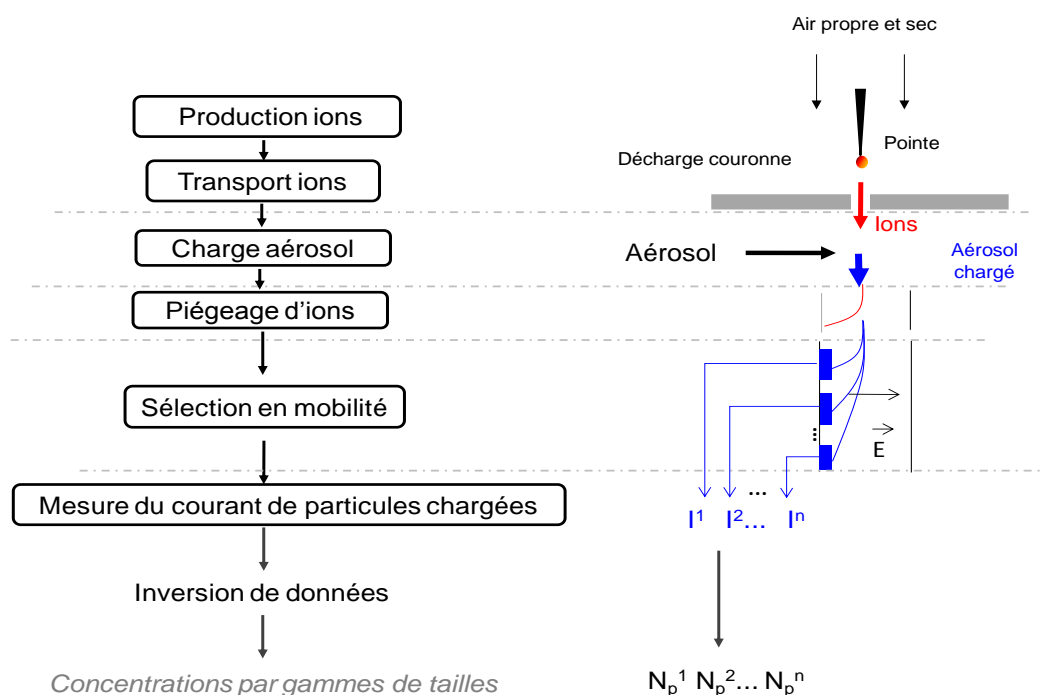


Figure 37 : schéma de principe de mesure et des moyens mis en œuvre

II.2. Contraintes métrologiques

Les contraintes métrologiques relatives à ce cahier des charges sont détaillées ci-dessous.

II.2.1. Mesure de concentration à 10 Hz : fréquence d'échantillonnage et temps de réponse

La fréquence d'échantillonnage doit donc être au moins deux fois supérieure à la fréquence de mesure, soit 20 Hz (théorème de Shannon).

Le temps de réponse de l'instrument $t(63)$ est défini comme le temps que le système de mesure, soumis à un créneau de signal en entrée, met pour atteindre 63% de la valeur finale, indépendamment du temps de transit dans le système qui n'implique qu'un délai de détection facile à corriger si le signal à mesurer reste constant pendant ce délai. Toutefois, dans notre cas, la granulométrie et la concentration d'un aérosol évoluent pendant le transport dans le système. Cela impose donc de réduire le temps de transit de l'aérosol dans l'instrument à des temps du même ordre de grandeur que le temps de réponse souhaité.

Pour atteindre ce temps de réponse sur des aérosols submicroniques jusqu'à 10 nm, le courant minimum mesurable à 10 Hz dépend de l'appareil de mesure du courant de particules chargées, qui doit être choisi en conséquence.

II.2.2. Limite de détection en concentration

Pour détecter la plus faible concentration à étudier qui est de 10^3 cm^{-3} , le courant de particules chargées doit être supérieur au bruit de fond de l'électromètre d'environ 7 fA à 10 Hz.

Ce courant de particules chargées I_p , qui dépend du débit d'aérosol Q_A , du nombre de charge par particule q_p et de la concentration d'aérosol N_p , avec e la charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$), est donné par :

$$I_p = q_p \cdot N_p \cdot Q_A \cdot e > 7 \text{ fA}$$

Pour mesurer un courant de particules chargées supérieur au bruit de fond, il faut augmenter les trois variables de ce produit :

- *Augmenter la charge moyenne par particule* : Rappelons que le nombre de charge moyen par particule, dépend au premier ordre, du diamètre de l'aérosol et du produit $N_i \cdot t$. Si dans la plupart des chargeurs commerciaux, le temps de charge est de l'ordre de la seconde, pour un produit $N_i \cdot t$ de l'ordre de quelques $10^6 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ [BIS-09], ce temps doit ici, rester inférieur à 50 ms. Pour compenser, il nous faut augmenter la densité moyenne d'ions. Pour cela, il faut *limiter l'abaissement des densités d'ions injectées dans le chargeur diluées par le flux d'aérosol. Les débits d'ions soufflés de la décharge et d'aérosol injecté en post-décharge doivent donc être proches.*

- *Limiter les pertes d'aérosol pour augmenter N_p* : la concentration d'aérosol détectée en sortie de chargeur dépend des pertes dans l'instrument. Dans un système de mesure idéal, les pertes sont nulles et n'affectent pas la représentativité des mesures. Dans notre étude, nous visons à *limiter les pertes d'aérosol à 10% quelle que soit la taille, pour les négliger en première approximation lors de l'inversion de données.*

- *Augmenter le débit d'aérosol Q_A* : le débit minimum d'aérosol est défini pour mesurer un courant de particules chargées supérieur au bruit de fond sur le plateau qui donne le plus petit courant et dépend de la granulométrie. En clair, le courant de particules chargées par plateau doit être supérieur à la limite de détection de l'électromètre et au bruit de fond pour assurer des mesures à 10 Hz.

Dans le pire des cas, en considérant une concentration de particules de 10^3 cm^{-3} dans la gamme de 10 à 100 nm, partiellement chargée avec une charge moyenne de 0,35 (estimée pour un produit $N_i t$ de 10^6 s.cm^{-3} qui correspond à la limite basse pour un temps de charge de 50 ms en densité d'ion homogène, cf. §. I.3.7.4.b), un débit minimum d'aérosol de 30 L.min^{-1} permet d'atteindre la limite de détection de 7 fA à 10 Hz. *Ainsi, le débit minimum d'aérosol est fixé à 30 L.min^{-1} ainsi que le débit d'ions (cf. ci-dessus). Une fois ces débits de prélèvement d'aérosol de 30 L.min^{-1} et total de 60 L.min^{-1} dans le chargeur définis, les lignes de prélèvement et le chargeur sont dimensionnés en regard des contraintes de temps maximum de transit dans ces deux parties du système.* Toutefois, si la charge moyenne des particules dans la gamme de 10 à 100 nm est supérieure à cette première estimation basse, il serait alors possible soit d'augmenter le nombre de plateaux tout en restant au dessus des 7 fA minimum par plateau, soit de diminuer le débit d'aérosol pour limiter les pertes de charge et l'encombrement du système de pompage.

II.2.3. Séparation mobilimétrique des différentes gammes de taille pour l'inversion de données

La séparation des particules chargées selon la mobilité électrique impose une relation mobilité-diamètre ($\mu_p = f(d_p)$) bijective de façon à limiter les ambiguïtés pour l'inversion de données permettant l'évaluation des concentrations.

Ambiguïté d'évaluation de la concentration pour une mobilité : une particule de grande taille chargée n fois peut avoir la même mobilité qu'une particule plus petite monochargée et ainsi être collectée sur le même plateau de mesure. L'estimation de concentration à partir du courant est alors délicate puisque n particules monochargées et une grosse particule chargée n fois donne le même courant mesuré pour une concentration différente d'un facteur n . *Nous*

allons donc étudié la relation mobilité-diamètre selon les conditions de mélange ions-aérosol (cf.§.V.5)

Ambiguïté de l'évaluation de la concentration sur un plateau: pour une gamme de mobilité, les particules ne possèdent pas toutes le même niveau de charge. L'évaluation de la concentration sur cette gamme de taille ne peut être valide que si la gamme de mobilité est étroite : dans le cas contraire une modification de taille de l'aérosol, à concentration constante, induit une variation du courant de particules chargées qui pourrait être, de façon erronée, attribué à une variation de concentration. Lorsque la résolution en diamètre est suffisante et que les distributions de charge ne dépassent pas 5 charges, il est toutefois possible de s'appuyer sur le spectre de mobilité pour lever les ambiguïtés. Si l'une des conditions n'est pas remplie, il est nécessaire soit de faire des hypothèses sur la forme des distributions de taille, soit de combiner plusieurs mesures (avec un second système identique fonctionnant dans des conditions différentes ou avec un autre appareil de mesure) pour limiter les ambiguïtés. Cet aspect de l'inversion de donnée n'est pas l'objet de ce travail et ne sera pas traité plus en détail.

Élargissement de la distribution de charge : induit par l'écart de $N_{i,t}$ ($\Delta N_{i,t}$) vu par des particules de diamètres identiques, il augmente ces deux ambiguïtés. En effet, le caractère statistique de la diffusion ionique conduit à des niveaux de charge différents, d'où la notion de distribution de charge pour des particules de même diamètre. Dans notre cas, où la densité d'ions est hétérogène, cet écart de $N_{i,t}$ est accentué puisque la densité d'ions "vue" par les particules n'est pas identique. Cela est d'autant plus notable que les densités d'ions unipolaires sont élevées et que les profils de densités sont donc plus hétérogènes. *Dans le chargeur retenu, cet effet doit être limité pour éviter l'élargissement de la distribution de charge et donc les ambiguïtés lors de la séparation des particules selon leur mobilité (cf. §.2.3).*

Enfin, toujours pour limiter les ambiguïtés lors de l'inversion de données, *la linéarité entre le courant de particules chargées et la concentration d'aérosol sera validée en vérifiant que la charge par particule est indépendante de la concentration d'aérosol.*

II.3. Transport EHD des ions → optimisation du chargeur pour la « granulométrie »

Le chargeur idéal pour la charge rapide en moins de 50 ms devrait permettre (a) de produire des profils de densité d'ions établis quasi-stationnaire, (b) de ne pas altérer la distribution en taille de l'aérosol à caractériser pendant le transit dans le système (c) d'éviter ou au moins limiter les pertes de particules (d) d'atteindre un niveau de charge maximal par particule, (e)

avec des distributions de charge les plus étroites possible et (e) d'obtenir une relation mobilité-diamètre bijective.

Rappelons que le but est d'obtenir un produit $N_i.t$ de l'ordre de quelques 10^6 s.cm⁻³ (cf. ci-dessus *Nombre de charge moyen par particule*). Cette valeur de $N_i.t$ correspond à un diamètre de « partial charging » (seule une fraction des particules de diamètre inférieur sont chargées) de l'ordre de 100 nm ; par exemple seules 10% des particules de 10 nm sont chargées. Il est donc souhaitable de dépasser cette valeur de $N_i.t$ pour assurer une bonne sensibilité de mesure notamment pour les particules les plus fines. Une densité moyenne d'ions de l'ordre de 10^8 cm⁻³ est requise pour compenser le temps de charge court (<50 ms). Pour de telles densités d'ions unipolaires, nous avons confirmé par deux méthodes que les répulsions électrostatiques conduisent à la décroissance de plusieurs ordres de grandeur de la densité d'ions dans la zone de charge en post-décharge (3 ordres de grandeurs en 50 ms). *L'originalité de cette étude repose donc sur l'hétérogénéité des profils de densités d'ions unipolaires, i.e. sur l'hétérogénéité des conditions de charge.*

Pour disposer d'une source d'ions stable qui permette d'atteindre des densités d'ion maximales en entrée de chargeur, nous avons d'abord cherché à augmenter le courant entrant dans l'extracteur et limiter les pertes pendant le transit jusqu'à la sortie dans le chargeur. En outre, il faut optimiser le nombre d'ions disponibles pour la charge des particules, c'est-à-dire maîtriser les flux ioniques dans le chargeur. Pour cela, nous avons cherché à maîtriser la compétition EHD qui gère la trajectoire des ions dans l'espace inter-électrode de décharge, dans l'extracteur et dans le chargeur. Ce travail vise donc à optimiser la source d'ions et le mélange ions-aérosol pour atteindre la charge maximale avec des distributions de mobilité le moins larges possibles sur toute la gamme de diamètres.

II.3.1. Transport EHD des ions de la décharge couronne → source d'ions

Deux configurations de décharge (pointe-plan troué et fil-fente) ont été optimisées en termes de densité initiale en post-décharge ($> 10^9$ cm⁻³) pour compenser le temps de charge court. Toutefois, seuls les résultats obtenus dans la configuration pointe-plan troué sont présentés ici pour : (i) identifier les variables de contrôle de la compétition EHD qui gèrent la trajectoire des ions dans l'espace inter-électrode de décharge et dans l'extracteur et (ii) préciser les conditions de charge dans le chargeur retenu avec une source d'ion. En effet, les résultats obtenus en configuration fil-fente n'apportent rien de plus en termes de compréhension des processus et des variables de contrôle.

Nous avons d'abord défini la géométrie et les conditions de fonctionnement qui garantissent la stabilité de la source d'ions par décharge couronne en configuration pointe-plan troué.

La comparaison des profils de densités de courant de décharge au plan avec la loi théorique de Warburg a permis d'identifier l'effet du flux gazeux injecté dans l'espace inter-électrode sur le confinement EHD des ions pour augmenter le courant entrant dans l'extracteur. Une étude paramétrique (forme et dimensions de l'extracteur) de l'efficacité d'extraction des ions a permis d'identifier les variables physiques dont elle dépend au premier ordre (rapport du temps de dérive sur le temps de transit des ions). Nous avons confirmé que le transport EHD des ions résulte d'une compétition entre les forces électrostatiques et la convection. Nous avons alors optimisé l'extraction des ions de l'espace inter-électrode vers la post-décharge pour atteindre les densités initiales visées en entrée de chargeur $> 10^9 \text{ cm}^{-3}$ et donc des densités d'ions moyennes de l'ordre de 10^8 cm^{-3} dans le chargeur selon le courant de décharge, le débit dans la décharge et le champ électrique dans l'extracteur.

II.3.2. Etude et optimisation des conditions de charge ($N_i.t$) selon le mélange ions-aérosol

Une fois ces densités initiales en entrée de chargeur atteintes, nous avons caractérisé la charge d'aérosols monodispersés dans ces profils de densité d'ions hétérogène. En effet, le produit $N_i.t$, et donc le nombre de charge moyen par particule, dépend du temps de charge, du profil de densité d'ions dans le chargeur mais aussi de la trajectoire de l'aérosol, qui définissent les densités ioniques "vues" par les particules le long de leur trajectoire. Pour une source d'ions donnée (géométrie, Q_{ions} , N_i°), ces variables, temps de charge, profil de densité d'ions et trajectoire de l'aérosol dépendent du mélange ions-aérosol. En effet, le profil de densité d'ions ou distribution spatiale des ions dans le chargeur dépend certes de la densité d'ions initiale en entrée du chargeur mais aussi du champ électrostatique et de la vitesse du gaz en tout point du chargeur. *Il faut souligner que pour mettre en évidence les variables qui gèrent le transport EHD des ions et définissent les flux et les profils de densité ioniques dans le chargeur, nous avons travaillé avec des extracteurs permettant de mesurer indépendamment le courant de décharge en amont de l'extracteur dans l'espace inter-électrode et le courant d'ions collectés en aval de l'extracteur à l'entrée du chargeur.*

Deux configurations de mélange ions-aérosol appelées face-à-face et concentrique sont alors étudiées pour montrer l'impact respectif, puis couplé de ces trois variables sur la charge moyenne et la distribution de charges relative à la variabilité des conditions de charge vue par les particules de même diamètre dans le chargeur.

Les différents chargeurs ont été comparés pour sélectionner le chargeur optimal par injection d'un aérosol monodispersé de diamètre fixé (460 et 820 nm, pour garantir des mesures de courants de particules chargées supérieures à la limite de détection de l'appareil de mesure du courant et au bruit de fond du système complet).

II.3.3. Caractérisation du chargeur retenu

Le chargeur retenu est finalement caractérisé pour des diamètres de 10 à 820 nm en termes :

- de $N_{i,t}$ moyen (relatif à la charge moyenne mesurée par particule),*
- d'écart de $N_{i,t}$ (relatif à la distribution de charge mesurée),*
- de relation charge/mobilité-diamètre,*
- de relation courant de particules chargées-concentration*
- et de pertes / pénétration dans le chargeur*

II.3.4. Test de faisabilité des mesures de concentration à 10 Hz

Le séparateur électrostatique est dimensionné à partir de la relation mobilité-diamètre mesurée en aval du chargeur pour valider la mesure de concentration à 10 Hz et définir la résolution en diamètre dans le système complet. Ce séparateur est un prototype de test pour identifier les points critiques à améliorer.

Le temps de réponse de l'instrument est mesuré à partir de sa réponse à un créneau de concentration d'aérosol (réponse indicielle).

Le séparateur électrostatique est enfin caractérisé en termes de résolution en diamètre par mesure des courants de particules chargées sur deux plateaux selon la taille d'aérosol monodispersé puis polydispersé.

III. MATERIEL ET METHODES

III.1. Introduction

Le dispositif expérimental a été développé pour produire des ions unipolaires par décharge couronne, charger l'aérosol en post-décharge et caractériser la source d'ions et le chargeur afin de réaliser l'étude décrite dans le §.le chapitre II

Les résultats présentés ici ont été obtenus à l'aide d'un prototype de chargeur modulable qui permet de faire varier les paramètres de décharge (la distance inter-électrodes d_{gap} , le rayon de courbure R_c), de l'extracteur (matériaux, surface : diamètre D) et de mélange ions-aérosol (configuration du mélange : perpendiculaire, concentrique ou face-à-face).

Ce chapitre décrit le matériel et les méthodes utilisées ainsi que les précautions prises pour assurer des mesures fiables sans artefact.

III.2. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental permet de contrôler les paramètres critiques dans chaque zone :

- électriques : tension et courant de décharge et courant d'ions en zone de mélanges,
- hydrauliques : débits et pressions,
- aérosol : granulométrie (taille et concentration), courant de particules chargées.

Il comporte quatre blocs (cf. Figure 38) :

- Le circuit de conditionnement de gaz sec ($H_r < 5\%$) sans composés organiques volatils ni particules en suspension
- Le système de production d'aérosols de taille et concentration contrôlées et variables de 10 à 1000 nm et de 0 à 10^5 cm^{-3}
- Le chargeur d'aérosols et les instruments de caractérisations électriques des courants d'ions, de décharge et en sortie de l'extracteur
- Un dispositif pour le diagnostic de l'aérosol (taille, concentration, distribution de charge)

Les différentes parties du dispositif expérimental sont détaillées dans les paragraphes ci-dessous.

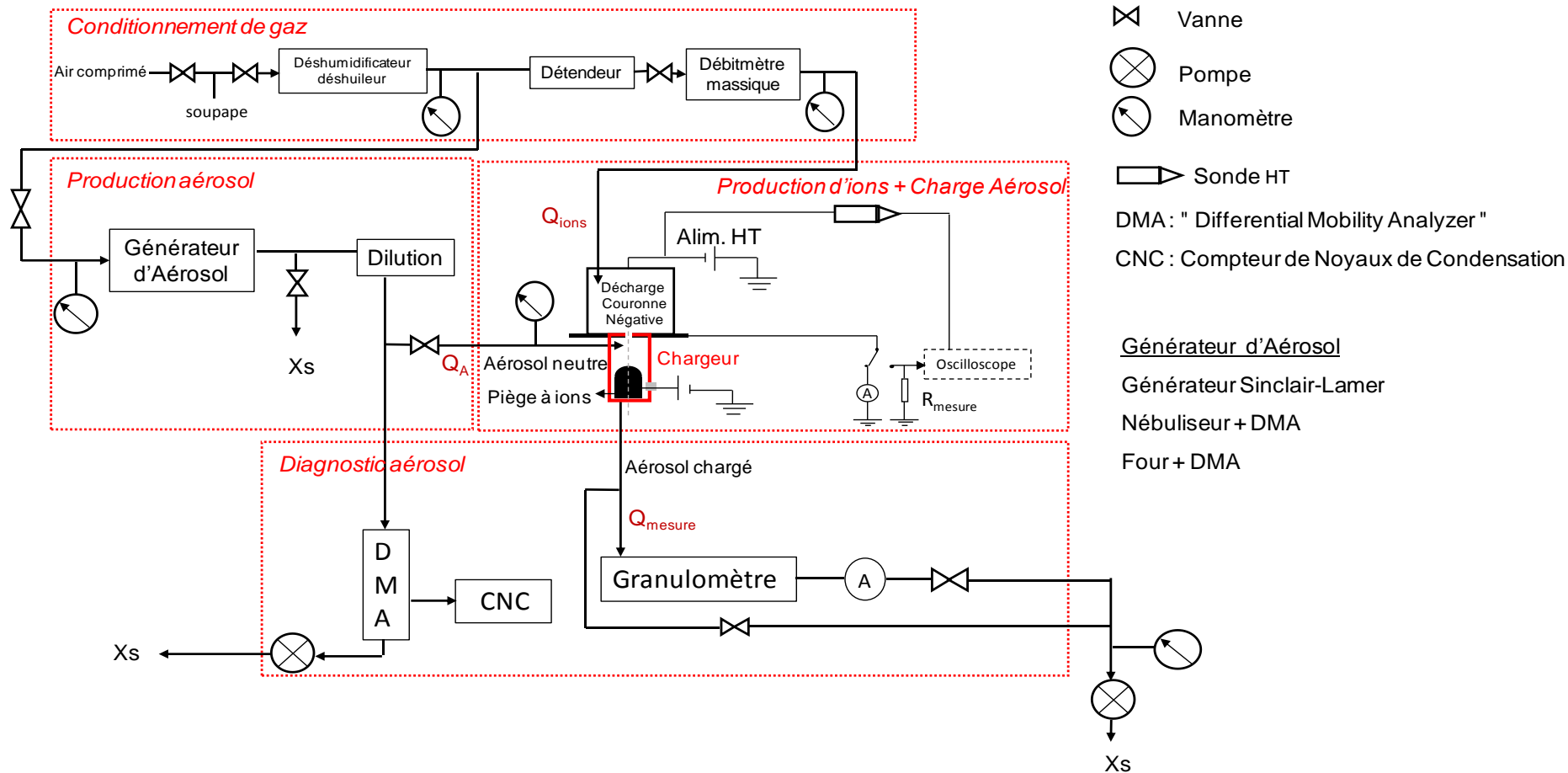


Figure 38: schéma synoptique du dispositif expérimental

III.3. Conditionnement de gaz

L'air est fourni par le réseau d'air comprimé du laboratoire. Pour éviter la formation de particules par nucléation réactive des traces d'huile du compresseur, l'air comprimé passe dans un déshuileur puis sur un tamis moléculaire ($d_{\text{pore}} < 5$ Angstrom). Cela garantit en outre une humidité relative inférieure à 5% pour éviter la condensation sur les ions qui modifie les mobilités ioniques et donc la caractéristique de la décharge (cf. §.I.2.3.1). L'air est ensuite filtré à l'aide d'un filtre très haute efficacité (THE) pour éliminer d'éventuelles particules résiduelles en suspension dans le gaz. De plus, l'humidité affecte les propriétés électriques de la décharge, en particulier en présence de matériaux isolants par modification de la conductivité électrique.

Régulation des débits et pressions : Les détendeurs positionnés en sortie du compresseur permettent d'abaisser la pression de 5-7 à 2 bars. Les débitmètres massiques permettent ensuite de contrôler le débit injecté dans la décharge (de 5 à 30 L.min⁻¹) et dans le système de dilution pour le contrôle de concentration d'aérosol (de 28 à 29,9 L.min⁻¹). Les pressions dans la décharge et dans la zone de mélange sont contrôlées par les différentes pertes de charges dans la ligne qui dépendent des débits de gaz. Des manomètres permettent de mesurer les pressions dans le volume de décharge et en entrée de la zone de mélange.

III.4. Génération d'aérosol calibré

III.4.1. Production d'aérosol monodispersé

Afin d'étudier la charge, des aérosols monodispersés et calibrés en diamètre et en concentration sont utilisés.

Les générateurs sont présentés selon la gamme de taille d'aérosol produit :

- $d_p \in [10-150]$ nm : Les particules sont produites à partir de sel (NaCl) évaporé dans un four dont la température varie de 500 à 800 °C. Les vapeurs produites sont entraînées par un flux d'air sec refroidi pour former un aérosol unimodal par nucléation des vapeurs de sels alors saturées. Un aérosol monodispersé est ensuite produit grâce à la sélection de taille réalisée à l'aide d'un neutraliseur et d'un DMA (cf. Figure 39b, cf. ANNEXE 1 : PRINCIPE DU "DIFFERENTIAL MOBILITY ANALYZER" (DMA)).

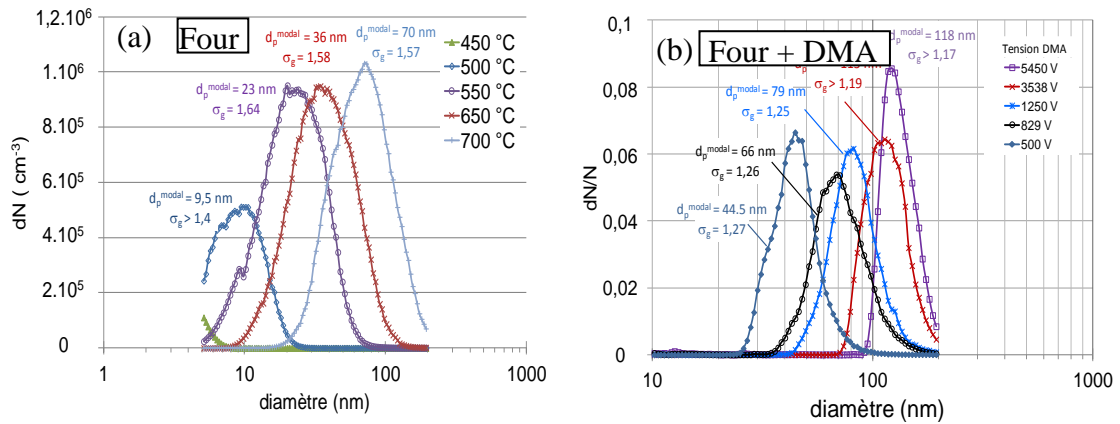


Figure 39: granulométrie (a) en sortie du four pour différentes température (b) en sortie du DMA Pour s'affranchir des particules bi-chargées en sortie du DMA, la sélection en taille doit être réalisée dans la partie décroissante de la distribution initiale sortant du four (cf. Figure 39.a).

- $d_p \in [150-300]$ nm : la nébulisation d'une solution aqueuse par un gaz à grande vitesse entraine de fines gouttelettes. Les grosses gouttes sont impactées aux parois. L'évaporation des gouttelettes produit des résidus secs cristallisés. Un aérosol monodisperse est obtenu grâce à la sélection en taille imposée par un DMA (cf. ANNEXE 1 : PRINCIPE DU "DIFFERENTIAL MOBILITY ANALYZER" (DMA))
- $d_p \in [400-1000]$ nm : Le générateur détaillé en ANNEXE 4 : PRINCIPE DU GENERATEUR SINCLAIR -LA MER permet de générer un aérosol monodispersé dans une large gamme de tailles et de concentrations. Le principe est basé sur le contrôle de la condensation hétérogène de vapeurs de DEHS (Di-Ethy-Hhexyl-Sebacate) sur des noyaux de sel. Les distributions granulométriques obtenues au DMA pour différentes températures de saturateur sont représentées sur la Figure 40 pour des températures de saturateur de 140 et 150 °C.

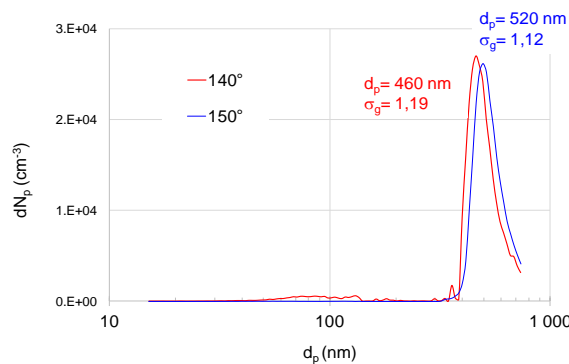


Figure 40 : distributions granulométriques en sortie de SLG mesurées au DMA pour $T_{\text{saturateur}} = 140$ et 150 °C

Le tableau ci-dessous (cf. Tableau 4) donne le diamètre modal et l'écart type géométrique pour différentes températures du saturateur (140, 150 et 165°).

Tableau 4 : diamètres modaux et écarts types géométriques en sortie du SLG et du four avec/sans DMA)

Générateur	T° (°C) (*)	Diamètre modal (nm)	σ_g (en sortie générateur)	σ_g (en sortie DMA)
SLG	140	440-460	1,15-1,22	-
	150	515-530	1,12-1,17	-
Four	500	9,5	1,4-1,57	1,17-1,25
	700	70	1,4-1,57	1,17-1,25
Nébuliseur	-	300	>1,4	

(*) Température du four / saturateur pour le générateur SLG

Il convient de souligner qu'une dérive du diamètre modal a été observée. Cette dérive est due à l'oxydation DEHS en présence d'oxygène car le gaz utilisé est l'air. L'augmentation de la taille de l'aérosol peut atteindre plus de 100 nm à 140° en 30 à 40 heures de fonctionnement. Plus la température du saturateur est élevée, plus cette dérive est rapide (quelques heures seulement à une température de saturateur de 165°). Une vérification de la granulométrie de l'aérosol produit par le SLG, en début et en fin d'expérience est donc indispensable.

III.4.2. Système de dilution et stabilité temporelle de l'aérosol

La concentration de l'aérosol à étudier varie de 10^3 à 10^5 cm^{-3} . Les concentrations produites par les générateurs d'aérosols sont supérieures à 10^6 cm^{-3} . Une dilution de l'aérosol est alors nécessaire pour atteindre les concentrations requises. Le système de dilution employé pour l'étude est schématisé sur la Figure 41.

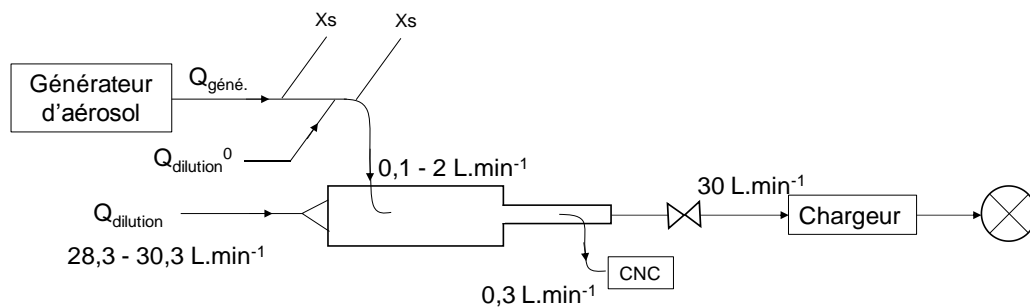


Figure 41 : système de dilution "maison" développé pour l'étude de la charge

Seule une partie du débit sortant du générateur est utilisée, l'excès (X_s) est aspiré par un système de retraitement des effluents. Le système de dilution est composé d'une chambre de dilution et d'une injection d'air propre contrôlée par un débitmètre massique et d'une injection de débit d'aérosol contrôlé par le pompage en aval du chargeur.

Le débit total injecté dans le système de dilution est de $30,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ ($30 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ pour le chargeur et $0,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ pour le CNC). Le débit d'air propre injecté dans le chargeur varie entre $28,3$ et $30,2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ par pas de $0,1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ selon la concentration voulue. Ce débit d'air propre impose donc la différence par rapport au $30,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, aspirée de la voie en sortie du générateur d'aérosol. L'aérosol est injecté dans le système de dilution par une canule de diamètre 3 mm, dans une chambre de diamètre 40 mm. L'air propre et d'aérosol sont injectés dans le même sens pour limiter les pertes de charge sur la voie aérosol. Le mélange s'effectue sur 20 cm. Un autre tube est connecté en aval de la chambre de dilution de diamètre 20 mm. Dans ce tube, une canule de prélèvement d'aérosol permet de prélever $0,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ pour la mesure de concentration en amont du chargeur avec un CNC. La vanne amont du chargeur permet de contrôler le débit aspiré par le chargeur à $30 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$.

Une pré-dilution est assurée par le débit Q_{dilution}^0 pour stabiliser les faibles concentrations ($<10^4 \text{ cm}^{-3}$).

En outre, pour la stabilité des débits, il convient de démarrer la pompe et les débitmètres massiques au minimum 20 min avant les mesures.

La Figure 42 représente un suivi temporel de la concentration de l'aérosol injecté dans le chargeur. Chaque palier correspond à un débit de dilution.

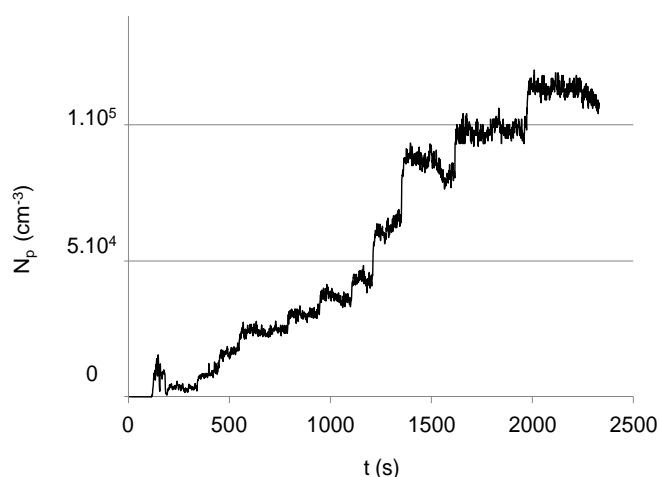


Figure 42 : suivis temporels de la concentration d'aérosol contrôlée par le débit de dilution de $30,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ à $28,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$

Au temps $t=0$, le débit de dilution est maximum ($30,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$), le débit prélevé du générateur d'aérosol est alors nul et la concentration de l'aérosol dans le chargeur est alors nulle. En diminuant le débit de dilution, le débit d'aérosol prélevé augmente. Les différents plateaux de concentration correspondent aux différents débits de dilution injectés à chaque reprise. La concentration de l'aérosol dans le chargeur augmente alors avec la diminution du débit de dilution.

III.5. Mesures aérosol

III.5.1. Concentration et distribution en taille

Trois instruments sont utilisés pour les mesures aérosol : le compteur de noyaux de condensation (CNC 3022 TSI cf. ANNEXE 2 : PRESENTATION DU COMPTEUR A NOYEAUX DE CONDENSATION) pour la mesure de concentration de l'aérosol ; l'analyseur de mobilité différentielle (DMA 3071 TSI cf. ANNEXE 1 : PRINCIPE DU "DIFFERENTIAL MOBILITY ANALYZER" (DMA) et le « particle counter sizer » (PCS Palas, cf. ANNEXE 3: PRESENTATION DU "PARTICLE COUNTER SIZER" (PCS) pour la mesure de la distribution granulométrique.

Le "PCS" est utilisé pour les aérosols de taille supérieure à 250 nm.

III.5.2. Evaluation de la charge moyenne

Le piège à ions : Pour mesurer le courant de particules chargées, il faut d'abord collecter les ions gazeux résiduels après le chargeur. Sans cela, les ions qui n'ont pas été collectés (ni sur l'aérosol, ni sur les parois du chargeur) s'ajouteraient au courant de particules. Pour s'affranchir de cet artefact, un piège à ions est positionné en aval de la zone de charge, il est dimensionné pour collecter 100% des ions et moins de 1% des particules chargées.

Un piège à ions est composé de deux électrodes. L'une est polarisée et l'autre à la masse.. Les ions déviés par ce champ électrique sont collectés sur l'une des électrodes (selon la polarité des ions et de l'électrode).

La sortie du piège à ions sert d'entrée au séparateur électrostatique. Afin d'obtenir une bonne résolution de séparation en mobilité la fente doit être la plus fine possible. Néanmoins, pour limiter les pertes de charge à quelques mbar, la symétrie cylindrique de la zone de charge est respectée (rayon externe $R_{out} = 1 \text{ cm}$), l'espace inter-électrode retenu est

de 1 mm, l'électrode centrale à une forme d'ogive. Un piège à ions cylindrique est alors réalisé (cf. Figure 43).

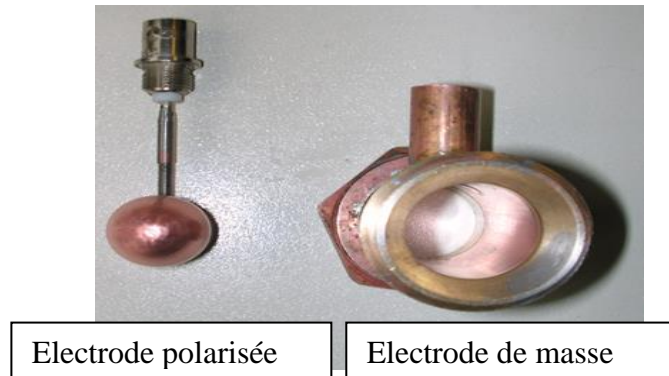


Figure 43 : photo de dessus de l'ogive polarisée et du cylindre de masse du piège à ions développé
 Dans ces conditions, le rayon de l'électrode interne de 0,9 cm et une longueur du piège à ions de 1,5 cm permettent la collection des ions pour une tension théorique de 7 V. Les détails sur le dimensionnement du piège à ions sont donnés dans Figure 44

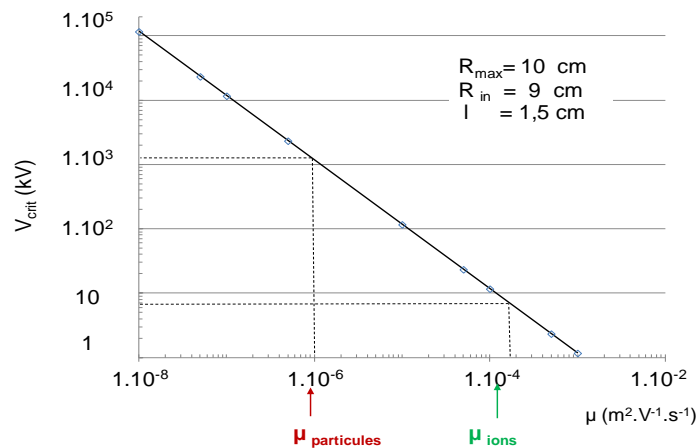


Figure 44 : relation entre la tension théorique de collection à 100% et la mobilité électrique
 Pour collecter 100% des ions, dont la mobilité est d'environ $1,8 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, il faut appliquer une tension d'environ 7 V. Une tension de 7V ne permettrait pas de collecter les particules chargées même les plus mobiles. A titre indicatif, la mobilité des particules les plus mobiles (10 nm chargées 2 fois, obtenue pour un produit $N_i \cdot t$ très élevé de l'ordre de $10^8 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$) est de l'ordre de $10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. Pour collecter 100% des particules dans ce piège à ions, il faudrait appliquer une tension d'environ 1000 V.

Validation expérimentale et choix des conditions de fonctionnement : Pour trouver la tension à partir de laquelle le piège à ions permet de collecter la totalité des ions qui restent en sortie du chargeur, une tension est appliquée à l'électrode du piège à ions. Le courant d'ions est ensuite mesuré à l'électromètre pour un débit total de $60 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$.

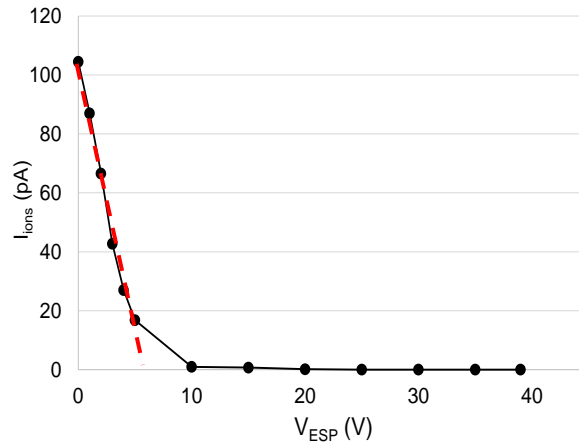


Figure 45 : évolution du courant d'ions mesuré en sortie du piège à ions selon la tension ($I_d=50 \mu\text{A}$)

Le courant d'ions mesuré avec un électromètre placé en sortie du piège à ions (sans tension appliquée au piège à ions) est d'environ 100 pA (cf. Figure 45). Ce courant d'ions décroît ensuite exponentiellement en augmentant la tension appliquée jusqu'à s'annuler à 10 V. La tension critique à appliquer est du même ordre de grandeur que celle attendue théoriquement (environ 7 V). En effet, l'écoulement du gaz est quasi-laminaire dans le piège à ions, ($Re = 6,6 \cdot 2 \cdot (R_{out}^2 - R_{in}^2) \cdot V_{gaz}$ en unité CGS $Re = 2200 < 4000$). Dans toute l'étude, une marge sur la tension de polarisation est prise. Le piège à ions est polarisé à 30 V au lieu de 13 V.

Il faut noter que le piège à ions créé un champ électrique dans la zone de mélange et par conséquent affecte la répartition d'ions dans la zone de mélange ions-aérosols (cf. §.V.5.4). Pour s'affranchir cet effet un grillage métallique, et qui joue un rôle écran, est posé en sortie du chargeur.

a. Nombre moyen de charge par particule et pénétration

L'évaluation du nombre moyen de charge par particules en sortie du chargeur (charge extrinsèque après les pertes dans le chargeur, cf. §.I.3.7.4.a) repose sur la mesure simultanée en aval du chargeur et du piège à ions de la concentration et du courant d'aérosol chargé, à l'aide d'un électromètre à cage de Faraday (3078 TSI) :

$$\langle q_p \rangle = I_p / e \cdot N_p^{aval} \cdot Q_{\text{électromètre}}$$

Pour l'évaluation de la pénétration ($P = N_p^{aval} / N_p^{amont}$) du chargeur, la mesure des concentrations en amont et en aval du chargeur est nécessaire. L'étude de la charge dans les différents mélanges est réalisée avec des aérosols de diamètres 460 ou 820 nm. Dans ce cas, la pression dans la zone de mélange est de l'ordre de 900 mbar, la concentration de l'aérosol est mesurée avec un compteur optique PCS (cf. ANNEXE 3: PRESENTATION

DU "PARTICLE COUNTER SIZER" (PCS). En effet, le CNC fonctionne à pression atmosphérique et ne peut supporter un écart de pression supérieur à 20 mbar.

La vanne en amont du chargeur, qui sert à contrôler le débit d'aérosol prélevé par le chargeur, induit des pertes d'aérosols jusqu'à 50% (cf.§.III.4.2). L'évaluation des pertes dans le chargeur ne peut donc être basée sur la mesure au CNC qui est placé avant cette vanne. Cette vanne sera remplacée dans l'instrument final par un orifice critique permettant de contrôler le débit avec des pertes d'aérosol limitées.

Un protocole de mesure a été développé pour s'affranchir de cet artefact (cf. Figure 46). Afin de déterminer les pertes d'aérosol dans la vanne, des mesures de concentration dans chaque chargeur sont effectués au PCS en amont du chargeur entre la vanne et le chargeur et en aval du chargeur avec la décharge éteinte.

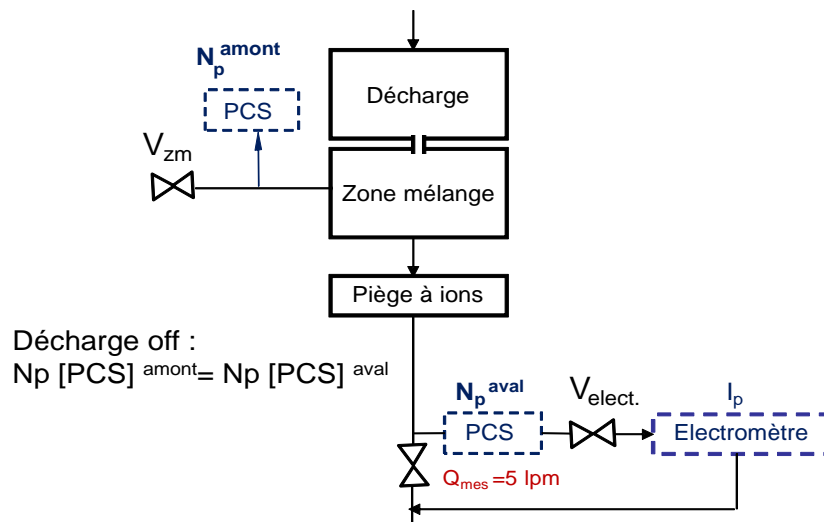


Figure 46 : schéma descriptif du protocole développé pour l'évaluation des pertes dans le chargeur. Dans les différents chargeurs testés, des pertes d'aérosol neutre ne dépassent pas 7%, quand la décharge est éteinte (i.e. sans pertes électrostatiques). En raison du facteur de dilution du flux aérosols par les flux d'ions ($F=2$), la concentration d'aérosol injectée est égale à la moitié (à l'incertitude de mesure près) de celle mesurée en aval du chargeur quand la décharge est éteinte ($N_p^{PCS\ amont}/2 \sim N_p^{PCS\ aval}$). La mesure de la concentration avec le PCS quand la décharge est allumée donne alors la concentration en aval du chargeur. La pénétration du chargeur peut alors être estimée par des mesures au PCS:

$$P = \frac{N_p^{aval}}{F \cdot N_p^{amont}} = \frac{N_p^{on}(PCS)}{N_p^{off}(PCS)}$$

La mesure de la concentration au CNC en amont du chargeur sert alors à ajuster le taux de dilution et à quantifier la fluctuation de la concentration de l'aérosol pendant la mesure au PCS.

Le dispositif expérimental utilisé pour le diagnostic de l'aérosol produit et pour la caractérisation du chargeur (pénétration et nombre moyen de charges par particule) est donné sur la Figure 47.

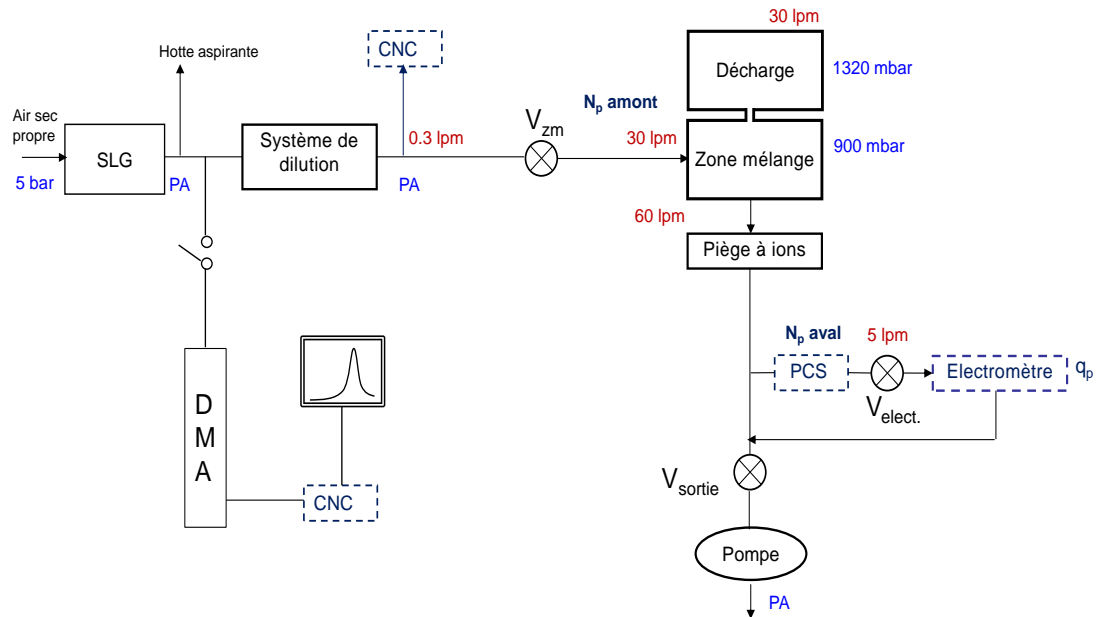


Figure 47 : schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation du chargeur

Il convient de souligner que la mesure de concentration dont dépend l'évaluation du nombre moyen de charge et la pénétration du chargeur est faite par le PCS. La calibration de ce dernier est donc primordiale. Pour cela, le CNC est d'abord calibré par comparaison à l'électromètre. Une fois le CNC calibré, le PCS est à son tour calibré par comparaison à l'électromètre (cf. ANNEXE 5 : CALIBRATION DES APPAREILS DE MESURE DE CONCENTRATION).

Tous les débits sont calibrés à 5% près à l'aide d'un étalonneur de débit.

III.5.3. Mesure des distributions de charge

Les mesures de distributions de charge en sortie du chargeur des aérosols monodispersés sont obtenues à l'aide d'un analyseur différentiel de mobilité électrique (ADME ou DMA radial pour limiter les pertes par diffusion des particules de diamètre inférieur à 200 nm, ou concentrique pour $d_p > 200$ nm) et un électromètre à cage de Faraday. Les deux appareils fonctionnent à 900 mbar.

Les distributions de mobilités électriques sont définies à partir de l'évolution temporelle du courant de particules chargées mesurée par l'électromètre en sortie du DMA représenté sur la Figure 48 pour des particules de 50 nm).

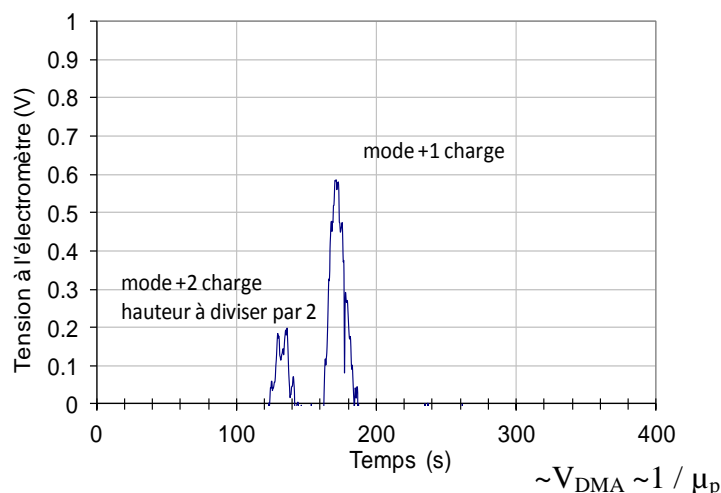


Figure 48 : évolution du courant de particules chargées mesuré avec un électromètre en sortie du DMA radial pour des particules de 100 nm (particules de NaCl produites par le four et présélectionnées avec le DMA cylindrique, on notera la présence de particules bi-chargées non désirées)

Chaque temps correspond à une tension dans le DMA et donc à une fenêtre/ gamme de mobilité électrique définie. Les concentrations modales de charges $+i$ doivent être divisées par le niveau de charge $+i$, pour évaluer la concentration à partir du courant. Les valeurs des modes des distributions de mobilité sont ensuite retraitées pour tracer les distributions de charge en fraction chargée à partir de la concentration totale calculée par la somme des concentrations de chaque mode.

Il faut noter que pour limiter les pertes des particules les plus fines par diffusion et par répulsion électrostatique à $0,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, la ligne de mesure est la plus courte possible (< 1 seconde).

III.6. Caractérisation de la source d'ions

III.6.1. Décharge électrique

La caractérisation de la décharge est basée sur les mesures de la tension appliquée à la pointe (V) du courant de décharge (moyen $-I$ - et instantané $i(t)$) pour identifier les régimes de décharge (Trichel ou couronne) et établir la relation potentiométrique $I=f(V)$. La mesure du courant d'ions en post décharge permet de s'assurer de la stabilité temporelle de la source d'ions et de quantifier les densités d'ions à l'entrée du chargeur.

L'étude de la décharge est réalisée en deux étapes: une étude préliminaire dans l'air ambiant et sans parois (système ouvert), et la deuxième dans une enceinte étanche sous flux d'air propre et sec (système fermé, cf. §.III.3).

Sur toutes les séries d'expériences en système ouvert, l'humidité et la température ambiantes varient entre 40 et 60 % et de 18 à 24° respectivement. Ces variations affectent les courants de décharge de moins de 5%. Le dispositif de caractérisation de la décharge en système ouvert est représenté sur la Figure 49.

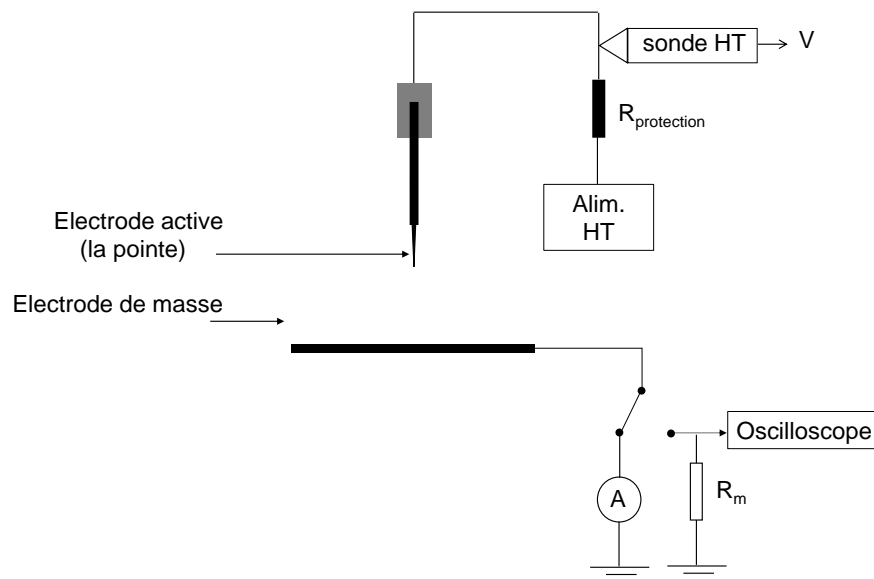


Figure 49 : dispositif expérimental de caractérisation de la décharge en système ouvert.

L'électrode active (pointe métallique) est maintenue perpendiculaire au plan de masse et reliée à une alimentation haute tension stabilisée en tension. Une résistance de 10 MΩ limite le courant dans le cas d'un passage à l'arc pour la protection des personnes et du matériel. Cette résistance engendre une chute de tension à ces bornes, la tension appliquée à la pointe est alors : $V = V_{\text{appliquée alim HT}} - R_{\text{protection}} \cdot I_d$.

La tension de la pointe est mesurée via une sonde haute tension (X1000). Le courant de décharge est mesuré aux bornes d'une résistance de mesure R_m sur un oscilloscope. Cette résistance R_m forme avec la capacité interne de l'oscilloscope (15 pF) un filtre qui déforme le signal à mesurer. Pour observer les impulsions de Trichel (durée de quelques 10 ns cf. §.I.2.2.4.b), une résistance de 50 Ω est retenue pour obtenir une bande passante de l'ordre du GHz ($F=1/(RC)$). Une résistance de 10 kΩ est utilisée pour identifier les régimes de décharges (Trichel, mixte et Couronne). Un multimètre est aussi utilisé pour mesurer le courant moyen via la même résistance de mesure.

En système fermé, la décharge est placée dans une enceinte où un débit de gaz est injecté parallèlement à la pointe et aspiré par un orifice percé dans l'axe de la pointe sur le plan de masse.

III.6.2. Evaluation du profil de densité ionique au plan

Pour montrer le confinement des ions par le flux de gaz dans l'espace inter-électrode (source d'ions), le courant de décharge est mesuré au plan sur des électrodes concentriques pour évaluer la densité de courant selon la position radiale par rapport à l'axe.

Pour cela, un plan composé d'anneaux métalliques séparés par des pistes isolantes est utilisé (cf. Figure 50). Sur chaque anneau métallique le courant est mesuré (I_1, I_2, \dots, I_{17} tel que $I_d = I_1 + I_2 + \dots + I_{17}$). L'estimation de la surface de chaque anneau via des approximations liées aux pistes isolantes permet d'évaluer la densité ionique sur l'anneau en question ($J_i = I_i / S_i$) (cf. §. ANNEXE 8 : CONFINEMENT EHD DES IONS DANS LA DECHARGE).

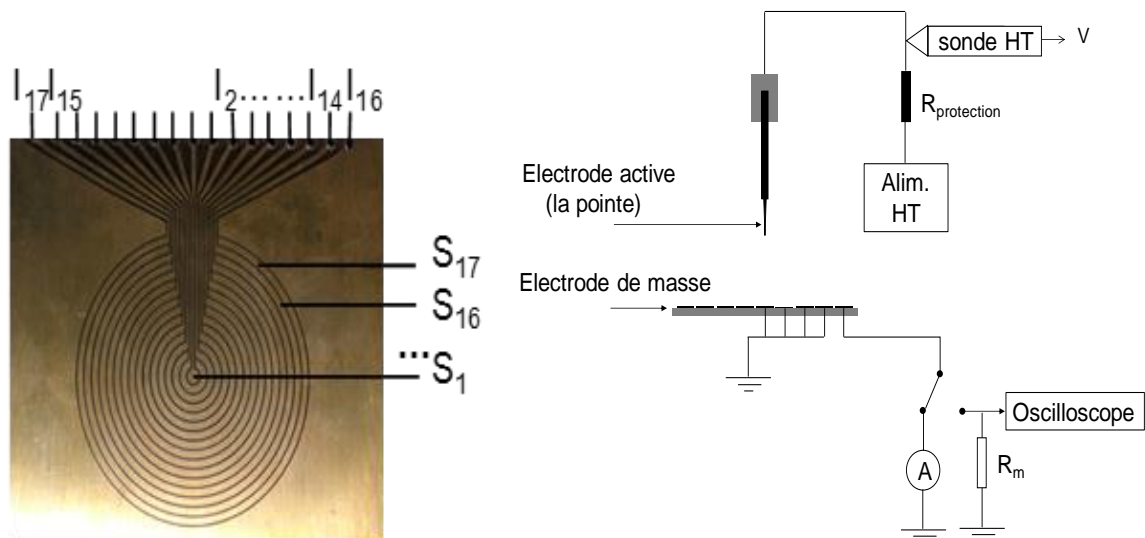


Figure 50 : plan en anneau utilisé pour l'évaluation de $j(r)$ et schéma du dispositif expérimental utilisé pour la mesure des courants sur les anneaux

Comme pour la caractérisation de la décharge, les profils de densité de courant ionique au plan $j(r)$ sont d'abord établis en système ouvert (sans trou d'extraction ni flux de gaz). Cette démarche est utilisée dans le but de valider le protocole de mesure pour différents paramètres de la décharge (V_d, R_c et d_{gap}).

Pour une configuration de décharge donnée (R_c et d_{gap}), le courant de décharge est contrôlé par la tension de décharge. A courant de décharge constant, les courants sur les anneaux sont mesurés un à un. Lorsque le courant sur un anneau est mesuré, les autres anneaux sont connectés à la masse.

III.6.3. Mesure du courant d'ions à l'entrée du chargeur $I_{mélange}$

La mesure du courant $I_{mélange}$ extrait de l'extracteur est nécessaire pour l'évaluation de la densité d'ions N_i^0 ($N_i^0 = I_{mélange} / e \cdot Q_{ion}$, avec e la charge élémentaire, Q_{ion} le débit d'ions). Il faut noter que cette estimation peut être entachée d'une erreur. En effet, cette estimation est basée sur le principe que les ions possèdent la même vitesse que le gaz (200 m.s⁻¹ au maximum dans l'extracteur). Or, la présence de champ électrique peut conduire à des vitesses d'ions supérieures à celle du gaz et donc à une surestimation de la densité d'ions. Toutefois pour atteindre électrostatiquement la même vitesse que le gaz, le champ électrostatique doit être de l'ordre de 10⁶ V.m⁻¹ (et ne peut dépasser le champ de claquage dans l'air de 2,7.10⁶ V.m⁻¹). Donc dans le pire des cas la densité d'ion est surestimée d'un facteur 3. C'est pourquoi les densités initiales d'ions en sortie d'extracteur /entrée du chargeur ne seront discutées ici qu'en termes d'ordre de grandeurs.

L'orifice d'extraction est percé dans un plan composé de trois couches : une première couche métallique du en amont de l'extracteur d'épaisseur 50 µm, un couche isolante en polytéréphtalate d'éthylène (PTPE) d'épaisseur 250 µm et une couche métallique de 1 mm d'épaisseur en aval de l'extracteur, assurant la rigidité mécanique du plan de masse) (cf. Figure 51).

Le courant $I_{mélange}$ se partage en deux parties, l'une collectée sur le plan de masse du côté de la zone de mélange $I_{collection}$. L'autre est collectée sur une grille de mesure connectée aux parois de la zone de mélange et à une mousse en aval qui permet de collecter tous les ions tout en permettant le passage du gaz I_{grille} .

Pour mesurer le courant collecté sur le plan de masse en aval de la décharge, appelé par la suite $I_{collection}$, un plan masse composé d'une superposition de couches métal-isolant-métal est utilisé. En effet, pour un plan de masse métallique le courant $I_{collection}$ collecté en aval de l'extracteur est "noyé" dans le courant de décharge collecté en amont de l'extracteur. L'isolant entre le plan métallique, en amont de l'extracteur (coté décharge) et le plan en aval (coté zone de mélange) permet d'isoler électriquement ces deux plans et de mesurer les courants I_d et $I_{collection}$ indépendamment.

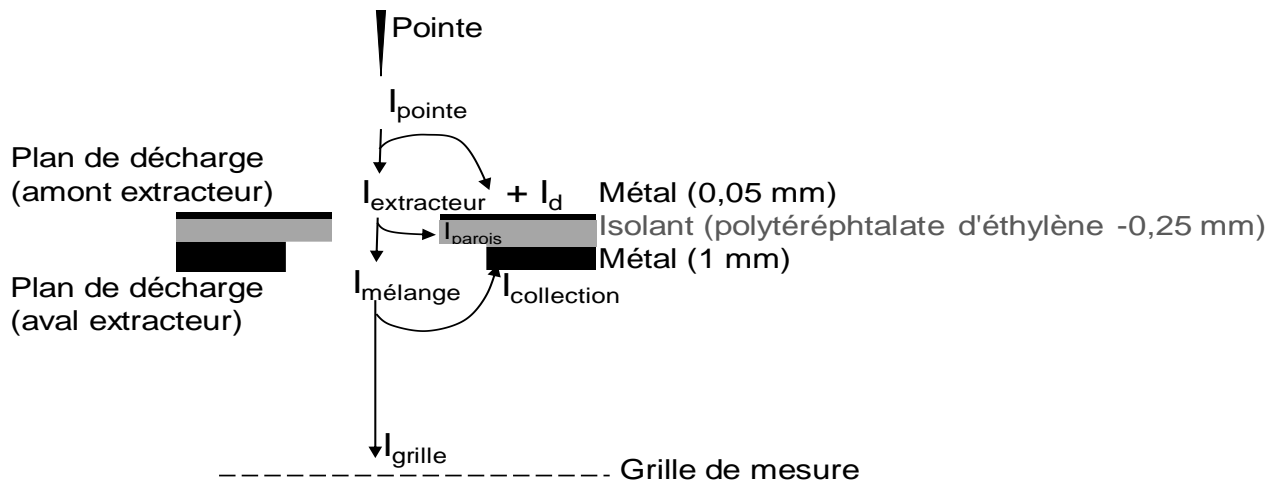


Figure 51: répartition du courant d'ions en sortie de l'extracteur

Pour éviter les fuites du courant du plan de décharge et le drainage des ions collectés sur l'isolant vers le plan coté zone de mélange induisant une surestimation du courant $I_{collection}$, des précautions doivent être prises. En effet, la nature de l'isolant et la position du plan coté zone de mélange par rapport au trou d'extraction sont critiques.

Différents isolants ont été testés (époxy, poly-acétal, polytéréphtalate d'éthylène –PTPE-). La résistivité de surface du PTPE est la plus élevée ($10^{15} \Omega/m^2$) et les fuites de courant plus faibles. De plus, pour favoriser le drainage des ions collectés sur l'isolant (PTPE) vers le plan de décharge, la ligne de fuite jusqu'au plan de la zone de mélange est rallongée en écartant ce dernier d'une distance $d=1$ mm du trou d'extraction (cf. Figure 52). Pour un diamètre du trou d'extraction de 2 mm, le diamètre du plan de zone de mélange est de 4 mm. Le courant de fuite vers le plan de décharge est négligeable devant le courant de décharge (moins de 1%).

Afin de mesurer les deux courants $I_{collection}$ et I_{grille} (cf. Figure 52), les parois de la zone de mélange sont isolées électriquement du plan de masse par un joint isolant.

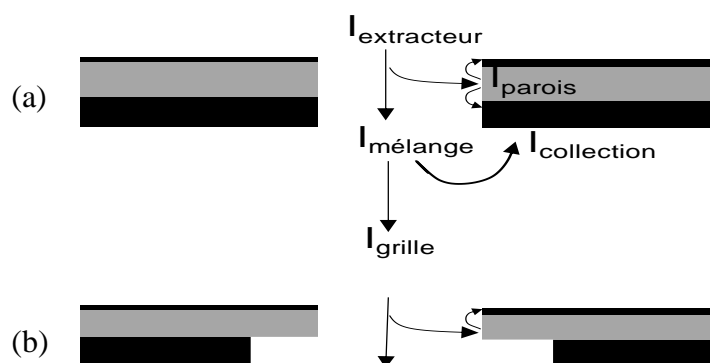


Figure 52 : allongement de la ligne de fuite de courant vers le plan zone de mélange

La position de la grille de mesure influe sur l'extraction des ions et leur répartition en zone de mélange. Pour avoir des mesures représentatives du courant d'ions dans la zone de mélange ion-aérosols, $I_{mélange}$, une étude de l'effet de la position de la grille a été réalisée pour définir la distance plan-grille à partir de laquelle son influence est négligeable sur la mesure. Les distances entre le plan zone de mélange et la grille de mesure sont de 0,5 ; 1 ; 3 et 5 cm. Le diamètre de l'extracteur est de $D= 4$ mm qui est le diamètre maximum étudié.

L'influence de la position de la grille sur le courant de sortie $I_{mélange}$ est représenté par la Figure 53a et sur la répartition du courant $I_{mélange}$ dans la zone de mélange exprimée avec le rapport $I_{grille}/I_{mélange}$ sur la Figure 53b.

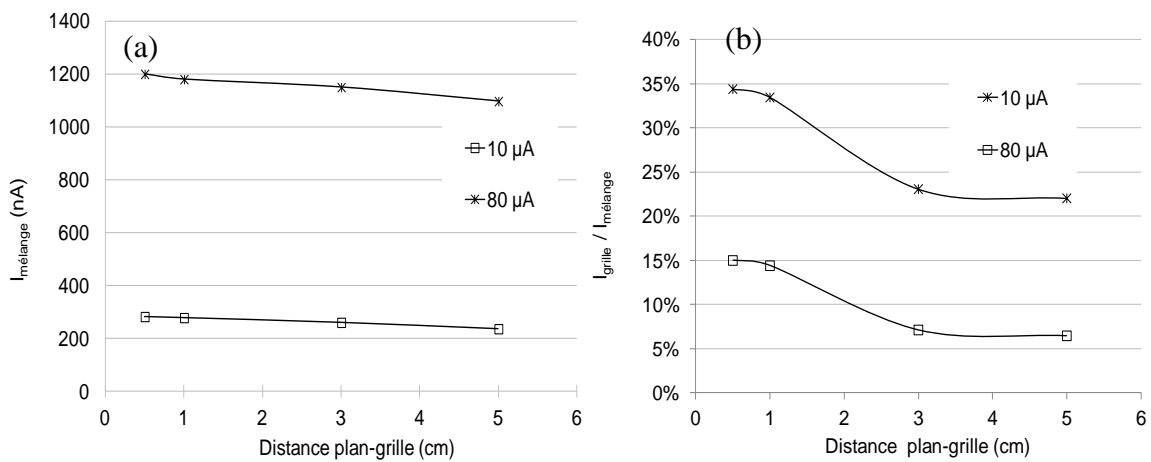


Figure 53 : influence de la position entre la grille et le plan sur l'extraction des ions ($R_c=80 \mu m$, $d_{gap}= 13$ mm, $Q_{ions}= 5$ L.min⁻¹, $D= 4$ mm) (a) $I_{mélange}$ et (b) $I_{grille}/I_{mélange}$ selon la distance plan-grille

Le courant $I_{mélange}$ décroît jusqu'à 18% pour $I_d= 10 \mu A$ et d'environ 8% pour $I_d= 80 \mu A$ en éloignant la grille de la sortie de l'extracteur de 0,5 cm à 5 cm. L'influence de la grille est d'autant plus élevée que le courant de décharge est faible.

Le pourcentage du courant mesuré sur la grille décroît également en éloignant la grille. La proportion du courant I_{grille} par rapport à $I_{mélange}$ décroît de plus de 15% pour $I_d= 10 \mu A$, et d'environ 7% pour $I_d= 80 \mu A$.

La grille de mesure modifie le champ électrique dans l'extracteur et en sortie de l'extracteur. En rapprochant la grille le champ électrique augmente purgeant ainsi la charge d'espace ce qui conduit à une augmentation du courant $I_{mélange}$ (limitation de l'effet écran lié à la présence d'ions de même signe). Pour une distance plan-grille supérieure à 3 cm, le courant $I_{mélange}$ et la proportion du courant I_{grille} par rapport à $I_{mélange}$ évoluent de moins de 5 %. La distance plan- grille utilisée dans toute l'étude est fixée à 3 cm.

III.6.4. Prototype développé

Une fois les paramètres de la décharge choisis (cf. §.IV.2.1.), polarité négative, $d_{gap}= 13$ mm, $R_c= 80 \mu\text{m}$, $d_{parois}= 5$ cm ; $P= 1020$ mbar l'ioniseur est réalisé. Le gaz est injecté par 4 injecteurs symétriques en amont de la décharge. Une grille placée à 5 cm de la pointe permet d'homogénéiser le flux circulant dans la zone de décharge. Les parois métalliques de la zone de décharge et de la zone de mélange sont isolées électriquement des plans de décharge et zone de mélange par des joints isolants de 3 mm d'épaisseur. Les parois de la zone de mélanges sont isolées par un joint d'épaisseur 3 mm des parties métalliques connectées aux électrodes de mesure des courants d'ions en zone de mélange.

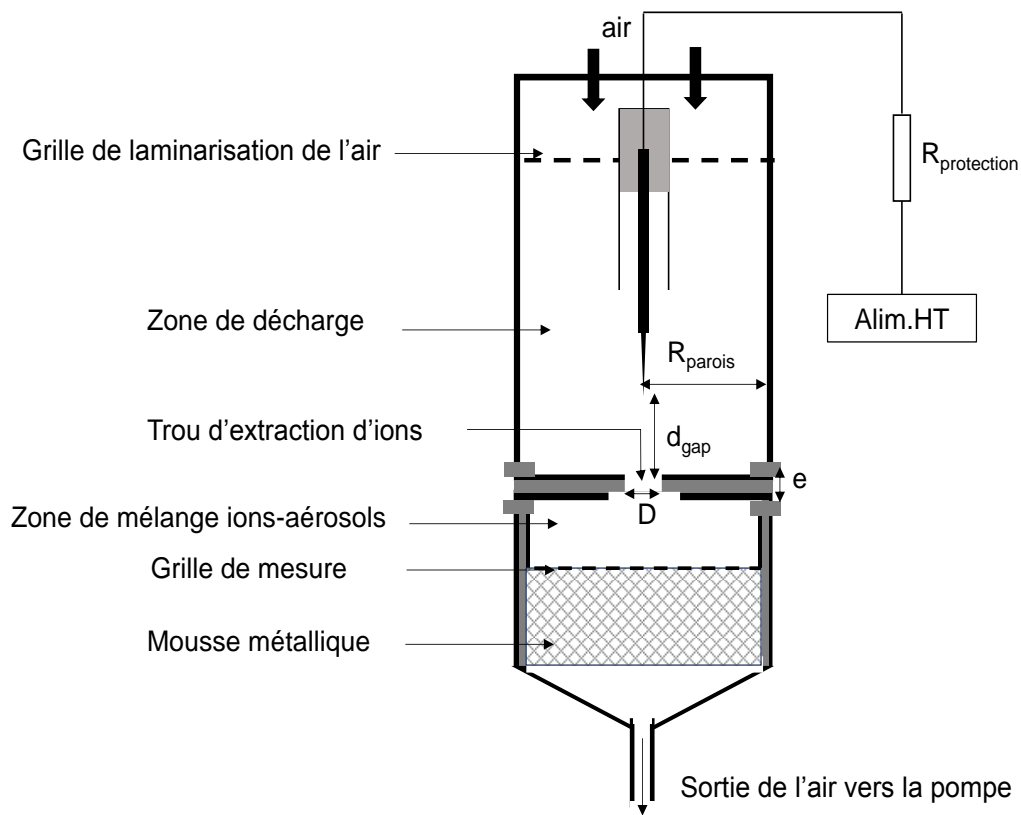


Figure 54 : prototype développé de l'ioniseur pointe-trou

Le prototype développé est adaptable, c'est-à-dire qu'il est possible de changer le plan de masse, la géométrie de décharge (R_c , d_{gap}) ou la zone de mélange.

III.7. Mesure du temps de réponse

Le montage expérimental utilisé pour déterminer le temps de réponse est schématisé sur la Figure 55. Il est composé d'un générateur d'aérosols. Les aérosols ainsi produits sont ensuite caractérisés en termes de concentration mesurés par un Compteur de Noyaux de Condensation (CNC) d'une part et injecté dans le chargeur d'autre part. L'étude du temps

de réponse du chargeur est réalisée par action d'électrovannes synchronisées (valves 1 et 2, cf. Figure 55) qui permettent de passer de façon quasi-instantanée de la voie filtrée à la voie aérosol. De cette manière, on peut produire un créneau de concentration. Signalons que le volume aéraulique entre la sortie de l'électrovanne n°1 et l'entrée du système de mesure de concentration a été minimisé, ainsi que le volume entre la sortie du filtre (voie n°2) et l'entrée du système de mesure, en utilisant un système de raccord en forme T et des jonctions spécifiques. Le volume aéraulique est inférieur à $0,3 \text{ cm}^3$ ($\varnothing 6 \text{ mm}$, L 10 mm).

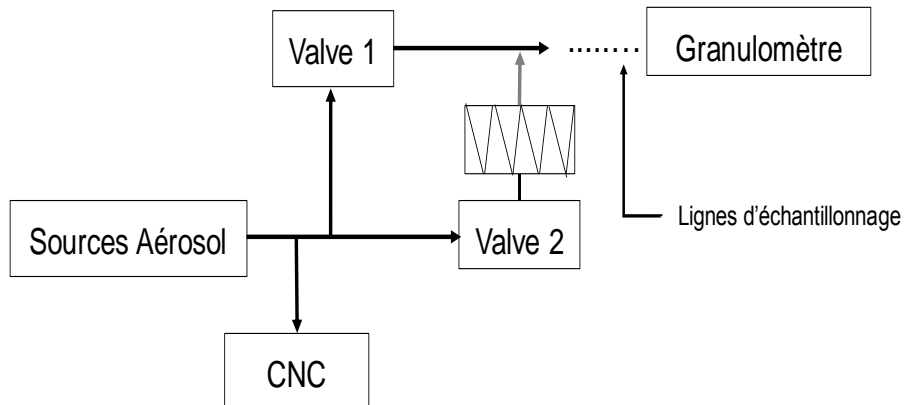


Figure 55 : dispositif de mesure du temps de réponse

Cette méthode est utilisée classiquement pour déterminer le temps de réponse d'instruments de mesure des aérosols. Citons par exemple les travaux de Quant *et al.*, (1992), Sem (2002), Held et Klemm (2006) et Hering *et al.*, (2008) sur les compteurs de noyaux de condensation. En ce qui concerne les instruments à détection électrique, des travaux ont été effectués sur le temps de réponse de l'ELPI (*Electrical Low Pressure Impactor*) par Held *et al.*, (2007) et plus récemment par Damay [DAM-10].

Signalons qu'il existe d'autres méthodes, plus lourdes à mettre en œuvre pour la détermination du temps de réponse ; par exemple : la méthode par variation sinusoïdale de la concentration (Buzorius, 2001) ou par variation exponentielle de la concentration (Gensdarmes et Géléoc, 2005).

La réponse du système de mesure au créneau d'aérosol est du premier ordre, les temps de réponses à la montée et à la descente en concentration sont mesurés à 63% (c'est-à-dire entre 0% et 63 % de la valeur atteinte à l'équilibre). Pour atteindre une fréquence de 10 Hz. Le total dédié à la charge, la séparation et la mesure est donc d'environ 160 ms (63% pour 100 ms).

III.8. Conclusions

Différents dispositifs ainsi que les protocoles de mesures pour les caractériser ont été développés pour l'étude.

- source d'ions : décharge et extraction d'ions,
- production et diagnostique d'aérosol,
- piège à ions,
- mesure du temps de réponse,

Le protocole de l'étude de la charge est donc le suivant :

- Mise en route du générateur d'aérosol et mesure de la distribution granulométrique au DMA et PCS une fois l'équilibre atteint (20 à 30 min après allumage)
- Vérification de l'étanchéité du système complet et des connexions électriques
- Mise en route de la pompe et réglages des débits dans les différentes parties du système (décharge, zone de mélange, CNC, électromètre) avec le débitmètre volumique et réglage des pressions dans la décharge et dans la zone de mélange.
- Vérification du fonctionnement de la décharge (caractéristique I(V), régimes, stabilité).
- Polariser le piège à ions 30 V.
- Réglage de la concentration de l'aérosol par contrôle du débit de dilution.
- Réglage du courant de décharge par contrôle de la tension.
- Décharge allumée, mesurer le courant de particules chargé simultanément avec la mesure de la concentration au PCS (N_p^{aval}). Moyenner le courant sur le temps de mesure au PCS.
- Eteindre la décharge, attendre la décroissance du courant de particules chargées jusqu'à 0 et faire la mesure de concentration décharge éteinte, toujours au PCS pour avoir N_p^{amont}
- Reprendre les mêmes mesures décharge éteinte et allumée 3 fois.
- Vérifier avec la mesure au PCS l'évolution de la taille de l'aérosol pendant la mesure.

A la fin d'une journée d'utilisation du générateur SLG, la granulométrie de l'aérosol produit est mesurée au DMA. Si le mode a évolué, le DEHS est alors changé.

IV. SOURCES D'IONS

IV.1. Introduction

Rappelons que l'objectif final est de développer un système de mesure de la concentration d'un aérosol atmosphérique ($N_p = 10^3$ à 10^5 cm^{-3}) sur au moins deux gammes de tailles (séparation autour de 100 nm) et un temps de réponse de 100 ms. La méthode de mesure retenue est rappelée succinctement (cf. Chapitre II). Cette méthode est basée sur la charge de l'aérosol par diffusion d'ions gazeux en post-décharge, la séparation par gamme de mobilité électrique et la mesure des courants de particules chargées. Les ions sont produits par une décharge couronne négative et soufflés hors de l'espace inter-électrodes vers la post-décharge et mélangés avec les aérosols. L'objectif de ce chapitre est de présenter les résultats qui ont conduit au développement d'une source d'ions stable dans le temps et optimisée en termes de densité d'ions initiale N_i^0 maximale dans la zone de mélange.

L'étude de la source d'ions est réalisée en deux parties. La première concerne la décharge électrique et vise à définir les conditions de fonctionnement (géométrie et plages de tension) assurant un courant moyen de décharge stable dans le temps. La seconde partie concerne l'étude de l'extraction d'ions de l'espace inter-électrode vers la post-décharge. Différents extracteurs sont alors étudiés selon le débit de gaz et le courant de décharge. Le transport des ions négatifs est géré par une compétition électro-hydrodynamique. Le confinement électrostatique ou hydrodynamique des ions est étudié dans le but d'optimiser la densité d'ions initiale dans la zone de mélange. Si l'extracteur métallique est retenu au final (cf §.V.5.7), l'impossibilité de caractériser le flux d'ions entrant dans la zone de mélange ions-aérosol dans ce cas, nous a conduit à développer des extracteurs de type sandwich (métal-isolant-métal). Ce type d'extracteur permet, en effet, de mesurer le courant d'ions dans la zone de mélange indépendamment du courant de décharge I_d , pour caractériser l'extraction d'ions et la charge de l'aérosol dans différentes configurations de mélanges en conditions contrôlées, de courant d'ions extrait de la zone de décharge et entrant dans la zone de mélange.

IV.2. Décharge électrique

L'étude bibliographique a montré qu'il existe différentes méthodes pour charger un aérosol (cf. §.I.3.6.2.d). Les décharges électriques continues sont utilisées depuis longtemps pour la charge des aérosols en raison de leur simplicité de mise en œuvre et des fortes densités d'ions qu'elles produisent. Il existe plusieurs géométries pour les décharges couronnes

utilisées comme sources d'ions pour la charge de l'aérosol, à savoir : pointe-plan troué, fil-grille, fil-cylindre...(cf.§.I.3.8) deux géométries ont été étudiées pointe-trou et fil-fente. Seule la géométrie pointe-trou est exposée ici car les résultats obtenus en configuration fil-fente n'apportent rien de plus en termes de compréhension des processus et des variables de contrôle.

Après avoir justifié le choix de la polarité négative pour la décharge, la caractérisation électrique des décharges en géométrie pointe-plan est effectuée en fonction des paramètres géométriques et électriques (tension V , distance inter-électrode d_{gap} , rayon de courbure R_c). La caractérisation électrique de la décharge est basée sur l'analyse des courbes potentiométriques (i.e. l'évolution du courant de décharge selon la tension appliquée) et l'identification des plages de tension des différents régimes de décharge (Trichel ou Couronne).

Dans un premier temps, l'étude paramétrique est conduite, dans l'air ambiant et sans parois (système ouvert) pour choisir les paramètres de la décharge pointe-trou. L'étude sous flux est ensuite effectuée en système fermé, l'effet de la pression et du débit de gaz sur la caractéristique potentiométrique ($I-V$) est alors étudié. L'effet du débit de gaz sur la répartition de la densité du courant ionique au plan est identifié.

IV.2.1. Etude paramétrique de la décharge pointe-plan

Les plages de tension de fonctionnement de la décharge sont étudiés selon la polarité, la distance inter-électrodes, le rayon de courbure, la pression et la température.

IV.2.1.1. Polarité négative

Plusieurs compromis entre trois critères exposés ci-dessous ont conduit au choix de la polarité de la tension appliquée à la pointe pour produire des ions négatifs.

Le premier critère, est de garantir un flux d'ions entrant dans le chargeur stationnaire et reproductible. Pour assurer la stabilité de la décharge, il faut que, pour un point de fonctionnement donné, le régime de décharge reste le même (Trichel ou Couronne). En effet, la transition d'un régime à l'autre s'accompagne d'un "saut" de courant de décharge et par conséquent du courant d'ions extrait vers la zone de mélange. Nous avons donc choisi des conditions de fonctionnement assurant des plages de fonctionnement d'au moins 2 kV pour chaque régime. En polarité positive et pour une distance inter-électrodes centimétrique, la plage de fonctionnement de la décharge sans filaments (dénommés

streamers qui conduisent à des variations temporelles du courant d'ions incompatible avec l'application visée) est de l'ordre de 2 kV contre environ 10 kV en polarité négative. Cette large gamme de tension de fonctionnement avec un courant d'ions extraits constant à moins de 5% est un atout indéniable de la polarité négative.

Le second critère, la durée de vie du système, est fortement lié à l'érosion de la pointe due au bombardement par les porteurs de charge est plus importante en polarité négative. En effet, une pointe alimentée en tension négative subit un bombardement ionique (ions positifs). Une pointe alimentée en tension positive quant à elle est bombardée par des électrons.

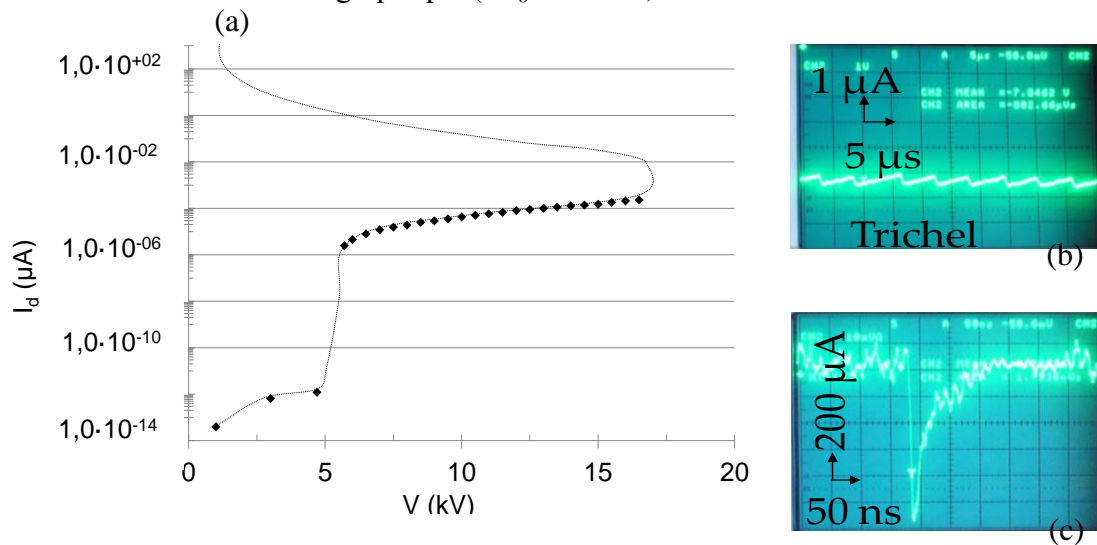
Le dernier critère concerne la dynamique de charge : la charge de l'aérosol dépend au second ordre du coefficient de diffusion des ions (au premier ordre du diamètre de la particule et du produit $N_i.t$). En effet, le coefficient de diffusion moyen des ions est plus élevé pour les ions négatifs que pour les ions positifs $4,3 \cdot 10^{-6}$ contre $2,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ [ALO-09]. La vitesse de charge, à densité d'ions égale, est donc plus grande pour les ions négatifs. Cependant, les pertes d'ions aux parois dépendent également du coefficient de diffusion et sont donc plus importantes pour des ions négatifs. La charge d'un aérosol de taille donnée est contrôlée au premier ordre par le produit $N_i.t$, la décroissance de la densité d'ions accrue pour les ions négatifs est donc défavorable. Ce compromis entre une vitesse de charge plus élevée et des pertes plus importantes limite donc la pertinence du choix de la polarité selon ce dernier critère.

En raison des plages plus larges de courants de décharge (avec des courants d'ions extraits constants dans le temps), la polarité négative est donc retenue. Pour limiter les instabilités de la décharge en raison de l'érosion de la pointe, accrue en polarité négative, le rayon de courbure de la pointe doit être choisi en conséquence. Toutes les courbes présentées par la suite sont obtenues dans cette polarité.

IV.2.1.2. Tension de décharge

Pour une géométrie de décharge donnée, l'évolution du courant de décharge et des régimes de décharge dépend de la tension appliquée. L'évolution du courant de décharge avec la tension appliquée à la pointe est désignée par la caractéristique $I-V$ (caractéristique courant-tension) ou caractéristique potentiométrique. La Figure 56 représente la caractéristique de la décharge pour une distance inter-électrodes $d_{gap} = 13 \text{ mm}$, un rayon de courbure de la pointe $R_c = 80 \text{ }\mu\text{m}$ et une pression dans la décharge de $P = 1020 \text{ mbar}$.

Les différents régimes de décharge sont identifiés. Le courant de décharge est alors mesuré pour différentes tensions pour établir une caractéristique I - V . La succession des régimes est décrite dans l'étude bibliographique (cf.§.I.2.2.4.b).



Les caractéristiques courant-tension et la succession des régimes (Trichel, Couronne) sont cohérentes avec la théorie des décharges pré-disruptives.

L'identification des régimes de décharge est essentielle, pour la charge d'aérosol qui impose une source d'ions stable en termes de densités d'ions dans la zone de mélange ions-aérosol. En effet, une variation temporelle du courant de décharge dans une échelle de temps supérieure au temps de charge (100 ms), induirait une variation de la densité d'ions dans la zone de mélange et donc des conditions de charge. Les régimes de décharge qui répondent à cette contrainte sont le régime de Trichel et le régime de décharge Couronne. Malgré les impulsions de courant de décharge observées dans le régime Trichel (amplitude l'ordre mA, durée quelques 100 ns cf. Figure 56c) le courant d'ions dans la post-décharge $I_{mélange}$ est constant. La mesure à l'oscilloscope sur 50 Ohm du courant d'ions collecté sur les parois de la zone de mélange présente un caractère impulsionnel (comme le courant de décharge) qui est du à un courant de déplacement. En effet les mêmes impulsions sont mesurées à contre flux (lorsque le gaz propre est injecté dans la zone de mélange vers la décharge. Cependant, dans le régime mixte (Trichel-Couronne) causé par les variations de tension de décharge induite par la résistance de protection (cf. §.III.6.1), les courant I_d et donc $I_{mélange}$ présentent des variations de plus de 20%, à chaque passage d'un régime à l'autre. Le régime d'arc produit des ions par bouffées induisant la variation temporelle du niveau de la charge des particules. Ces deux derniers régimes sont donc exclus ici.

IV.2.1.3. Distance inter-électrodes et rayon de courbure

Pour une pression et une température de l'enceinte de décharge données, la caractéristique $I-V$ et les plages de fonctionnement dépendent de la distance inter-électrodes et du rayon de courbure de la pointe. La tension d'amorçage et celle du passage à l'arc ainsi que celle de la transition d'un régime à un autre dépendent du divergent du champ électrique dans le gap. Plus le champ électrique est divergent, plus les plages de fonctionnement de la décharge sont grandes [NAS-71]. Or, le divergent du champ est d'autant plus élevé que le rayon de courbure est petit et que la distance inter-électrodes est grande. Cependant, il existe des compromis à respecter pour chacun de ces paramètres. En effet, le but est de dimensionner la décharge de façon à obtenir une plage de fonctionnement d'au moins 2 kV sur les deux régimes retenus en limitant la tension de fonctionnement à 20 kV.

a. Distance inter-électrodes d_{gap}

Trois distances inter-électrodes sont étudiées, 4, 8, et 14 mm, pour une pointe ayant un rayon $R_c = 50 \mu\text{m}$. L'évolution du courant de décharge et des plages de fonctionnement en fonction de la tension est donnée par la Figure 57(a). L'évolution des plages de fonctionnement en fonction de la distance inter-électrodes est donnée par la Figure 57 (b).

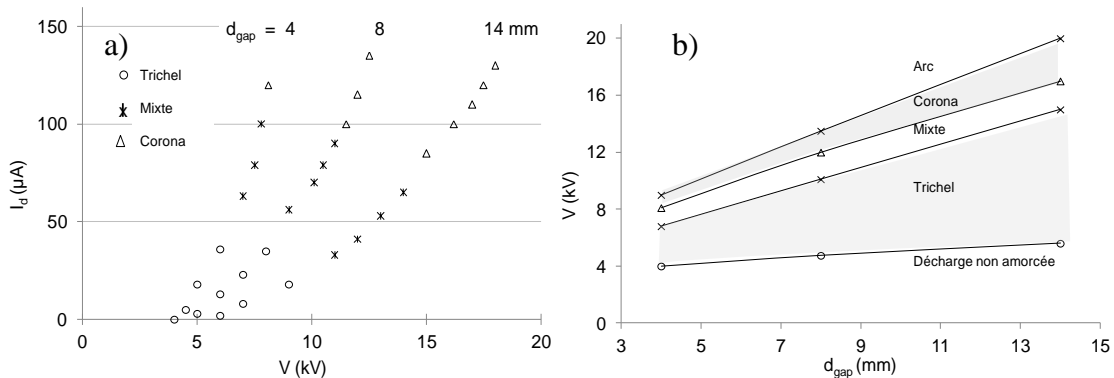


Figure 57: régimes de fonctionnement de la décharge ($R_c=50\mu\text{m}$)

La tension d'amorçage de la décharge augmente avec la distance inter-électrodes ($V=4$; 4,5 et 6 kV pour $d_{gap}=4$; 8 et 14 mm respectivement). En effet, pour une tension donnée, le champ réduit E/N qui contrôle l'amorçage de la décharge, est d'autant plus élevé que la distance inter-électrodes est petite. Les gammes de tension pour chaque régime sont d'autant plus larges que la distance inter-électrodes est élevée [NAS-71].

b. Rayon de courbure de la pointe R_c

Trois pointes de matériau identique et de rayons de courbure $R_c = 23$; 63 et 132 μm sont comparées pour une distance inter-électrodes $d_{gap} = 13 \text{ mm}$.

Les caractéristiques $I-V$ pour ces pointes sont données par la Figure 58 (a). L'effet du rayon de courbure sur les plages de fonctionnement est donné par Figure 58 (b).

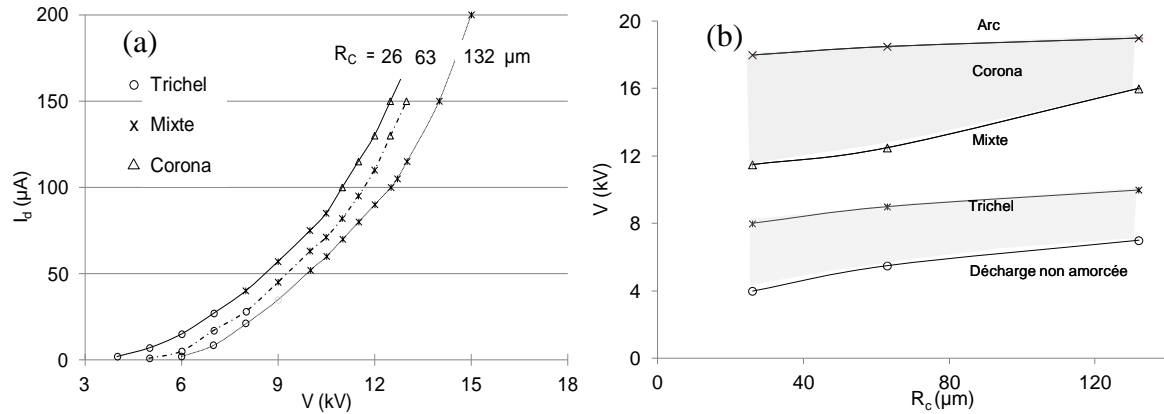


Figure 58: influence du rayon de courbure sur le fonctionnement de décharge $d_{gap}=13$ mm

A potentiel fixe, plus le rayon de courbure est petit, plus le champ électrique autour de la pointe est fort et divergent. Par conséquent, les tensions d'amorçage et de passage à l'arc sont d'autant plus faibles (pour $d_{gap}=13$ mm, $V_{amorçage}=3,8$; $4,7$ et $5,7$ kV ; $V_{arc}=17,9$; $18,4$ et 19 kV pour $R_c=26$; 63 et $132 \mu m$ respectivement). A tension constante, le courant de décharge augmente donc pour les pointes plus fines (à $V=13$ kV, $I_d=165$; 150 et $140 \mu A$ respectivement). Les plages de fonctionnement de la décharge sont plus larges pour des rayons de courbure faibles. Pour la distance inter-électrodes retenue $d_{gap}=13$ mm, les plages de fonctionnement des régimes de Trichel et Couronne sont de plus de 2 kV pour les trois pointes utilisées, quel que soit le rayon de courbure de la pointe entre 26 et 132 μm .

c. Choix des paramètres " d_{gap} " et " R_c "

Le choix des deux paramètres géométriques de la décharge d_{gap} et R_c doit respecter un compromis. En effet, le but est de développer une source d'ions stable sur au moins 2 kV, fonctionnant à une tension de maximale de 20 kV. Ce chargeur doit en outre être robuste et doit fonctionner avec un minimum de maintenance (notamment la pointe) avant une centaine d'heures de fonctionnement (la pointe a été changée 5 fois pendant toute l'étude, cf. §.IV.2.1.1.). En effet, une pointe fine offre des plages plus larges de fonctionnement en régimes de Trichel et Couronne. Cependant, dans la polarité négative choisie, la pointe est exposée à l'érosion par bombardement d'ions positifs. Une pointe de rayon de courbure intermédiaire $R_c=80 \mu m$ est alors retenue. Cela implique la distance inter-électrodes retenue de 13 mm afin d'obtenir des plages de fonctionnement en Trichel et Couronne (>2 kV) sans dépasser 20 kV. La caractéristique $I-V$ ainsi que les régimes de

fonctionnement pour ces conditions et pour une pression $P= 1020$ mbar est celle donnée par la Figure 58.

d. Température et pression

Le flux de gaz (débit de 5 à 30 L.min⁻¹) utilisé pour extraire les ions de la décharge à travers un extracteur de quelques millimètres de diamètre implique une surpression dans la décharge par rapport à la zone de mélange. Cela permet de limiter la contamination de la décharge par l'aérosol injecté dans le chargeur.

La température ambiante dans l'enceinte de décharge varie de 20 à 30°C. Dans ces conditions et à pression constante, le courant de décharge varie de moins de 2%.

Cependant, le courant de décharge décroît en exponentiel de $1/P$ (P : pression de la zone de décharge, [HEL-94]). Les caractéristiques I-V de la décharge ($d_{gap}=13$ mm, $R_c= 80$ μm) pour les pressions extrêmes de 1020 et 1250 mbar sont données sur la Figure 59.

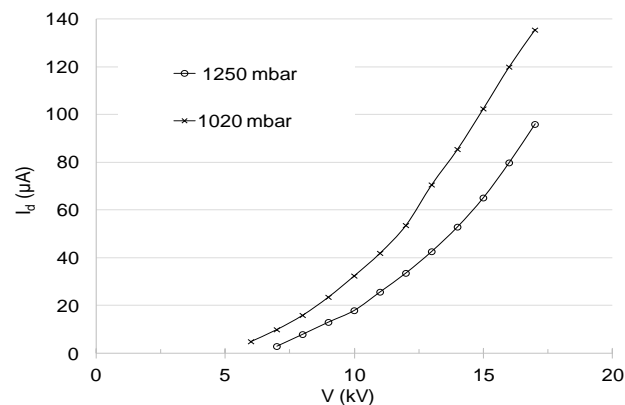


Figure 59 : caractéristiques I-V pour deux pressions ($P=1020$ et 1250 mbar)

Pour une géométrie (R_c et d_{gap} fixes), à tension et donc champ électrique E donnés, le courant de décharge est plus élevé pour la pression la plus basse (1020 mbar). En effet, le courant et les régimes de décharge sont contrôlés par le champ réduit E/N . Par conséquent, la tension de fonctionnement requise pour atteindre le même courant de décharge est d'autant plus faible que la pression est faible.

IV.2.1.4. Distances aux parois

Dans le but de dimensionner le rayon de la chambre de décharge, l'influence des parois sur la caractéristique de décharge a été étudiée.

La présence des parois affecte le champ au niveau de la pointe, la tension d'amorçage augmente donc en rapprochant les parois de l'électrode. La caractéristique I-V est affectée.

M. Goldman a montré que pour une influence négligeable des parois sur la décharge, la distance entre l'électrode active et les parois doit être 10 fois plus grande que la distance inter-électrodes ($d_{parois} = 10.d_{gap}$) [GOL-78]. Pour la distance inter-électrodes retenue ($d_{gap} = 13$ mm), un rayon de 130 mm est alors requis. Néanmoins, pour $d_{parois} = 3.d_{gap}$, l'influence est de moins de 10% quelle que soit la nature isolante ou conductrice de la paroi. Pour l'étude, un rayon de 50 mm permet de limiter l'encombrement du système et des parois métalliques tout en limitant les effets de polarisation des surfaces isolantes.

IV.2.2. Influence du flux de gaz sur la décharge

Le flux de gaz dans la décharge est utilisé pour extraire les ions de la décharge vers la post-décharge. De plus, il permet de purger les produits de la décharge (O_3 , NO_x ..) qui, sans flux, s'accumulent et déstabilisent la décharge.

Le flux de gaz affecte la répartition des ions dans l'espace inter-électrodes et donc le champ de charge d'espace et le courant de décharge. Certains effets du flux de gaz sur le courant de décharge et sur la répartition du courant d'ions au plan sont présentés.

IV.2.2.1. Sur le courant de décharge

Le courant de décharge est mesuré à tension fixe dans les deux régimes Trichel et Couronne pour différents débits de 5 à 30 $L.min^{-1}$ par pas de 5 $L.min^{-1}$. Comme indiqué dans le paragraphe § IV.2.1, la pression de la chambre de décharge est maintenue constante et égale à 1020 mbar. La Figure 60 décrit l'évolution du courant de décharge en fonction du débit pour des tensions de décharge $V = 9$ et 15 kV. Le courant de décharge augmente de moins de 5 % avec le débit. En effet, la vitesse moyenne du gaz dans la zone de décharge est de l'ordre de quelques centimètres par seconde. La vitesse du gaz à proximité de la pointe est alors négligeable comparée à celle des ions (qui est de l'ordre de 100 $m.s^{-1}$).

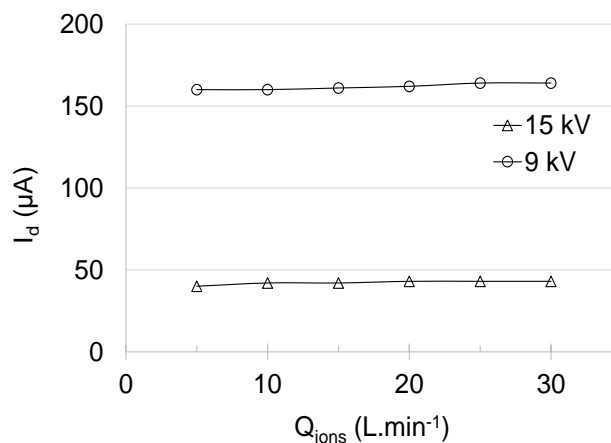


Figure 60 : évolution du courant de décharge en fonction du débit du gaz

Néanmoins, le débit de gaz modifie légèrement la distribution spatiale des ions. En particulier à proximité du trou où la vitesse du gaz est comparable à celle des ions. Dans ce volume à l'aplomb de l'extracteur, les ions sont purgés de l'espace inter-électrodes vers la post-décharge (sans être collectés sur le plan de masse), et donc le champ de charge d'espace qui rétrocontrôle le champ électrostatique à la pointe diminue. Une augmentation du courant I_d d'environ 5% est alors notée.

Par ailleurs, à pression constante, les gammes de tensions de fonctionnement des régimes Trichel et Couronne augmentent très peu avec le débit (moins de 200 V en passant de $Q_{\text{ions}} = 5$ à $30 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$). *Dans la suite de l'étude, les mesures à débit variable seront donc comparées à courant de décharge constant et non pas à tension de décharge constante pour s'affranchir de l'écart de 5 % du courant de décharge.*

IV.2.2.2. Sur la distribution de la densité du courant ionique au plan

Le courant entrant dans la zone de mélange $I_{\text{mélange}}$ dépend du courant entrant dans l'extracteur $I_{\text{extracteur}}$ et des pertes dans l'extracteur (cf.§.IV.3.1). Le courant $I_{\text{extracteur}}$ dépend au premier ordre du courant de décharge et de la taille de l'extracteur mais aussi du débit de gaz. Pour évaluer l'effet du débit sur ce courant $I_{\text{extracteur}}$, différentes méthodes ont été testées. La mesure directe de ce courant est impossible car toute sonde de mesure affecte le profil de densité d'ions. La méthode retenue est basée sur la mesure du profil de la densité du courant d'ions au plan et l'extrapolation de ce profil au niveau de l'extracteur (cf. §IV.2.2.3).

Le protocole expérimental pour l'évaluation du profil de densité du courant ionique au plan est donné (cf. §.III.6.2). L'étude est effectuée en deux étapes. Le protocole est d'abord validé par une série de mesures avec un plan sans orifice (système ouvert sans parois). Une deuxième série de mesures est réalisée dans un système sous flux avec le même protocole de mesure.

Validation du protocole de mesure: la densité du courant ionique au plan de masse est obtenue en divisant le courant mesuré sur chaque anneau par sa surface (cf.§.III.5.2). Cependant, la surface géométrique n'est pas la surface de collection apparente. En effet, la comparaison des résultats avec la loi de Warburg montre que les ions sont drainés essentiellement vers les anneaux centraux. Ceci est probablement dû au champ de polarisation des surfaces isolantes séparant les anneaux (cf. ANNEXE 8 : CONFINEMENT EHD DES IONS DANS LA DECHARGE). L'effet de ses surfaces

isolantes est donc pris en compte pour l'évaluation des surfaces apparentes. Ces surfaces apparentes sont, dans un premier temps, calculées pour des conditions de décharge données ($R_c = 60 \mu\text{m}$, d_{gap} de 8, 10, 12 mm et pour une gamme de tension de 8 à 18,5 kV) en utilisant les profils obtenus avec la loi de Warburg dans les mêmes conditions. Ces calculs des surfaces apparentes sont ensuite confirmés avec d'autres conditions de décharge (R_c de 30, 60, 80 et 130 μm et pour une large gamme de tension allant jusqu'à 20 kV). Les profils mesurés pour une distance inter-électrodes de 11,5 mm et un rayon de courbure de 60 μm pour plusieurs tensions dans les deux régimes Trichel et Couronne, sont donnés sur la Figure 61, ainsi que les calculs avec la loi de Warburg (cf. §.I.2.3.2) en trait plein.

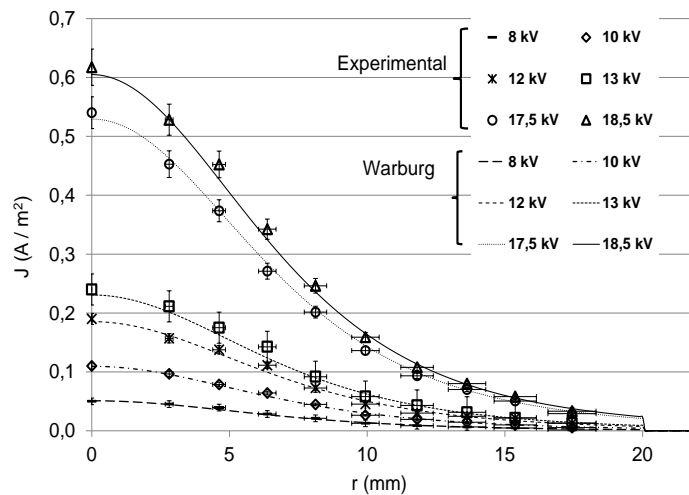


Figure 61 : profils $j(r)$ pour différentes tensions en régimes Trichel et Couronne ($R_c = 60 \mu\text{m}$; $d_{gap} = 11,5 \text{ mm}$)

Les profils $j(r)$ calculés et mesurés sont cohérents à 5% près. Les surfaces apparentes évaluées sont alors utilisées pour la mesure des mêmes profils sous flux (cf. ci-dessous).

Confinement électro-hydrodynamique des ions par le flux de gaz: avant d'étudier l'effet de débit, le premier test consiste à quantifier l'effet de l'orifice (trou dans l'électrode plane) sur le courant I_d et sur les profils $j(r)$ sans flux de gaz. Il a été montré qu'à partir du deuxième anneau, la présence du trou a un effet négligeable sur le courant de décharge et sur la densité de courant au plan.

L'effet du débit sur le courant I_d et sur le profil $j(r)$ est étudié pour la source d'ions pointe-trou ($d_{gap} = 13 \text{ m}$, $R_c = 80 \mu\text{m}$) et pour deux tensions en Trichel (9 kV) et en Couronne (17 kV). La pression est maintenue constante à 1020 mbar, quel que soit le débit de 5 à 30 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$.

Les profils de densités sous flux sont semblables à ceux calculés par la loi de Warburg sans flux.

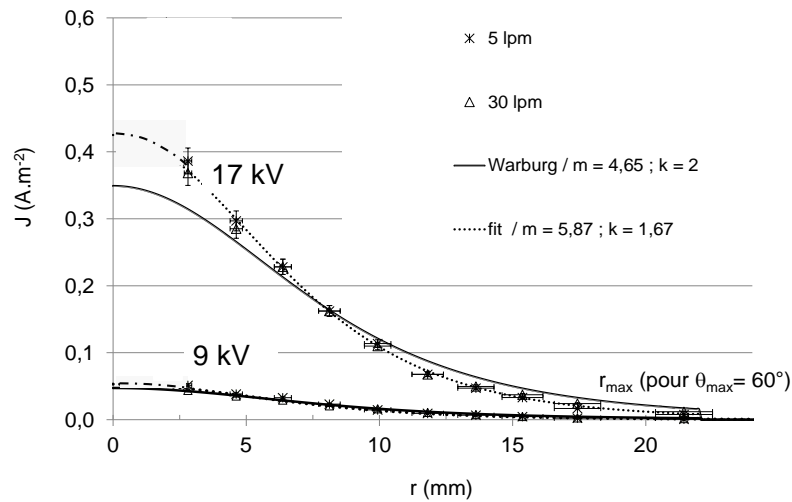


Figure 62 : influence du débit sur le profil de densité au plan ($R_c = 80 \mu\text{m}$; $d_{\text{gap}} = 13 \text{ mm}$, $D = 2 \text{ mm}$)

Cependant, la densité du courant avec un flux de gaz est plus élevée pour la partie centrale à proximité de l'axe (3 premiers anneaux) et plus faible pour les autres, comparée à celle obtenue sans flux de gaz. En utilisant une loi en $1/k' \cdot \cos^{m'}(\theta)$ (cf. ANNEXE 8 : CONFINEMENT EHD DES IONS DANS LA DECHARGE), le fit avec un écart de moins de 5% obtenu en utilisant le test du chi-carré, a donné la puissance $m' = 5,87$ (au lieu $m = 4,65$ sans flux) et un facteur $k' = 1,67$ (au lieu de $k = 2$ sans flux).

L'extrapolation de ces fits au niveau de l'orifice, conduit à une densité au centre de l'orifice plus élevée que dans le cas sans flux. Ce résultat s'explique par un confinement électro-hydrodynamique des ions vers l'extracteur lié à la purge de la charge d'espace au niveau de l'extracteur décrit au §IV.2.2.1. Malgré la variation négligeable du courant de décharge avec le flux de gaz (cf. Figure 60), peu sensible à la réduction du champ de charge d'espace au niveau du plan, la réduction du champ électrique radial qui accompagne cette purge d'ions est à l'origine de la modification du profil de densité d'ions au plan.

Il est important de signaler que les profils obtenus dans la gamme de débits entre 5 et 30 L.min⁻¹ sont similaires. L'évolution de la densité du courant a lieu essentiellement pour des débits inférieurs à 5 L.min⁻¹. Plus de détails sur l'effet de débit sur la répartition de la densité du courant au plan sont donnés en ANNEXE 8 : CONFINEMENT EHD DES IONS DANS LA DECHARGE.

IV.2.2.3. Evaluation du courant entrant dans l'extracteur : $I_{extracteur}$

L'efficacité d'extraction (ou transparence ionique $I_{mélange}/I_{extracteur}$) est l'un des paramètres qui permet d'étudier les mécanismes de pertes d'ions dans l'extracteur et de comparer les différentes géométries d'extracteur. Pour calculer ce paramètre, une estimation du courant $I_{extracteur}$ est nécessaire, c'est l'objet de ce paragraphe.

Méthodes de caractérisation : la première consiste à mesurer le courant de décharge à la pointe et au plan. La différence de ces deux courants étant le courant d'ions extrait de l'espace inter-électrodes non collecté au plan.

Le courant de décharge au plan est caractérisé par la chute de tension aux bornes de la résistance de protection, mesurée par deux sondes haute-tension (cf. Figure 63) moins le courant qui traverse la sonde connectée à la pointe :

$$I_{pointe} = (V_{alim} - V_{pointe}) / R_{protection} - V_{pointe} / R_{sonde\ HT}$$

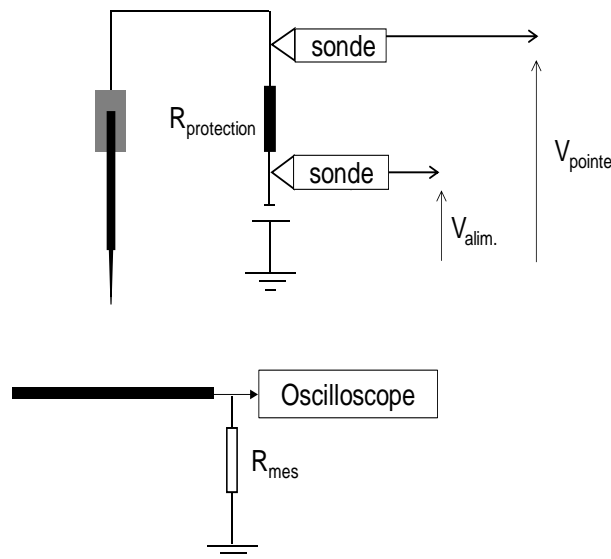


Figure 63 : dispositif utilisé pour évaluer le courant entrant dans l'extracteur

L'incertitude de mesure évaluée pour un courant au plan de $100\ \mu\text{A}$ est de :

$$V_{alim} = -17,4\ \text{kV} \quad V_{pointe} = -16,4\ \text{kV} \quad R_{protection} = 9,58\ \text{M}\Omega \quad R_{sondeHT} = 1,56\ \text{G}\Omega \quad I_{pointe} = 192\ \mu\text{A}$$

$$\Delta V/V = \Delta R/R \sim 1\%$$

$$\Delta I_{pointe}/I_{pointe} = 1/R_{protection} \cdot (\Delta V_{alim}/V_{alim} + \Delta V_{pointe}/V_{pointe}) + \Delta R_{protection} / R_{protection} \cdot (V_{alim} - V_{pointe})$$

$$+ V_{pointe} \cdot \Delta R_{sonde} / R_{sonde} = 170\%$$

L'évaluation du courant de pointe n'est pas assez précise, cette méthode a été abandonnée.

La seconde méthode consiste à extrapoler et à intégrer le profil de densité de courant mesuré sur la surface de l'extracteur.

Il a été montré que pour un diamètre $D=2$ mm, le profil de densité du courant au plan est indépendant du débit de 5 à 30 L.min⁻¹). Par la suite, nous faisons l'hypothèse que l'influence du débit, dans la gamme considérée, est aussi négligeable pour les diamètres $D=1$ et 4 mm.

Le courant entrant dans l'extracteur $I_{\text{extracteur}}$ est alors estimé pour un courant de décharge donné et un diamètre donné en utilisant la loi de Warburg modifiée (cf. §. IV.2.2.2). Une estimation de ce courant est donnée par la relation $I_{\text{extracteur}}=\alpha \cdot I_d$ (avec $\alpha=0,05$; 0,012 et 0,003 pour $D=4$, 2 et 1 mm respectivement). Le profil réel de la densité du courant ionique au-dessus de l'extracteur n'est donc pas mesuré. Cependant, une estimation du courant $I_{\text{extracteur}}$ est possible par l'extrapolation du profil de densité de courant au niveau du l'extracteur. La Figure 64 représente les estimations du courant $I_{\text{extracteur}}$ avec et sans flux pour deux courants de décharge ($I_d=10$ et 100 μA) et trois orifices de diamètre $D=1$, 2 et 4 mm. Ainsi, le débit de gaz augmente le courant $I_{\text{extracteur}}$ de plus de 25 %.

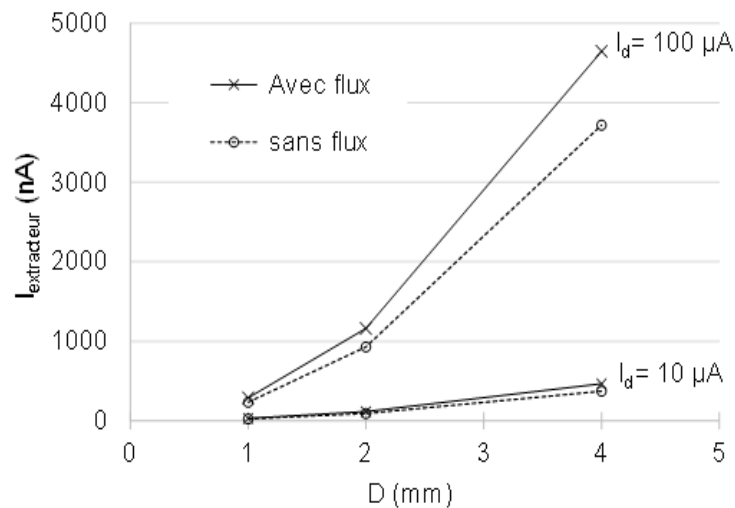


Figure 64 : estimation du courant $I_{\text{extracteur}}$ en présence du débit de gaz

Limites de cette méthode : les mesures du courant entrant dans le chargeur $I_{\text{mélange}}$ montrent que le courant $I_{\text{extracteur}}$ est sous-estimé par cette méthode. En effet, dans certaines conditions ($I_d < 30 \mu\text{A}$ et $Q_{\text{ion}} > 20 \text{ L.min}^{-1}$), le courant $I_{\text{mélange}}$ est plus élevé que le courant $I_{\text{extracteur}}$ estimé quel que soit le matériau des parois de l'extracteur.

Limite 1: profil réel au dessus du trou inconnu : la Figure 64 illustre un profil de densité de courant d'ions probable au dessus de l'extracteur (en gros pointillés), différent du fit utilisé pour estimer le courant d'entrée avec un creux au centre lié à la réduction de la densité de lignes de champ.

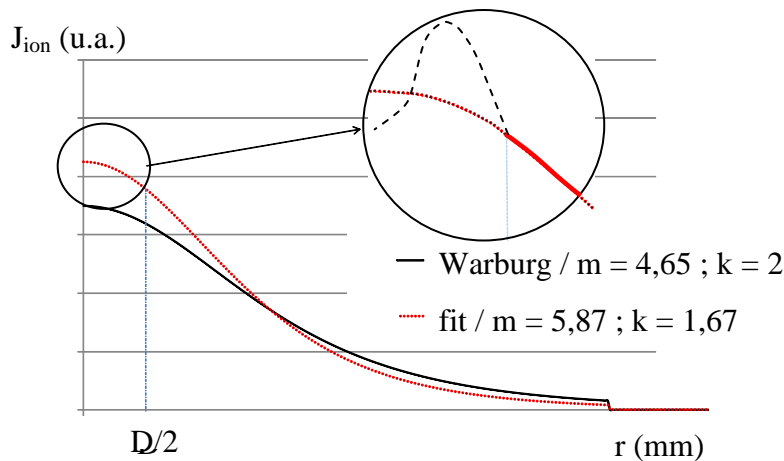


Figure 65 : profil de densité de courant réaliste au dessus de l'extracteur

La méconnaissance du profil de densité d'ions au-dessus de l'extracteur est un handicap pour l'évaluation de $I_{\text{extracteur}}$. Nous avons néanmoins choisi d'utiliser le fit (§.IV.2.2.2) pour rendre compte de la forme du profil mesuré de densité de courant au plan grâce au paramètre α décrit ci-dessus.

Limite 2: polarisation des parois internes de l'extracteur : le plan utilisé pour l'estimation des profils $J(r)$ est composé de deux couches, une couche métallique pour les anneaux déposées sur une couche isolante en époxy. La couche isolante de l'extracteur retenu pour l'étude est en polytéréphtalate d'éthylène (PTPE) qui possède une résistivité de surface plus élevée (cf.§.III.6.2). Le champ de polarisation de surface dans ce cas est plus grand. Ce champ de surface limite le courant $I_{\text{extracteur}}$ (cf. §.IV.3.3.1.a) et implique que le courant $I_{\text{extracteur}}$ soit sous-estimé.

IV.3. Extraction d'ions

Le but ici est d'identifier les processus qui gèrent l'extraction d'ions et les paramètres de contrôle. Pour atteindre un produit $N_i \cdot t$ du même ordre de grandeur que celui des chargeurs commerciaux, de l'ordre de 10^6 à 10^7 s.cm⁻³ [BIS-05], une densité moyenne d'ions dans la zone de mélange, de l'ordre de 10^8 cm⁻³ est requise pour compenser le temps de charge de 50 ms. En effet, le courant de particules chargées est proportionnel au nombre moyen de charges par particule q_p , à la concentration N_p et au débit d'aérosol Q_a ($I_p \propto q_p \cdot N_p \cdot Q_a$). Pour limiter l'encombrement et le coût du système de pompage, le débit d'aérosol à prélever doit être minimal. De plus, rappelons que la concentration de l'aérosol à mesurer est faible (10^3 à 10^5 cm⁻³). La charge de l'aérosol et donc la densité d'ions extraite doit être optimisée pour atteindre un nombre moyen de charge par particule q_p le plus élevé

possible. Pour des densités d'ions unipolaires qui dépassent 10^8 cm^{-3} , les répulsions électrostatiques engendrent une décroissance de la densité d'ions pendant ce temps de charge. Le profil de densité d'ions dans les chargeurs étudiés est donc hétérogène

Après la définition des conditions de fonctionnement de la décharge, l'extraction d'ions a été optimisée en configuration pointe-trou pour augmenter la densité d'ions à l'entrée de la zone de mélange. Pour cela, différents extracteurs ont été étudiés. L'extracteur métallique ne permet pas de mesurer le courant d'ions injecté dans la post-décharge car une partie de ces ions est collectée sur le plan métallique en aval de l'extracteur. Des extracteurs de type « sandwich » ont donc été utilisés pour séparer le courant collecté en aval de l'extracteur $I_{collection}$, du courant de décharge I_d et étudier l'extraction d'ions.

IV.3.1. Phénoménologie

Le transport des ions dans la décharge, l'extracteur et la post-décharge, est contrôlé par une compétition électro-hydrodynamique entre les forces électrostatiques et les forces d'entraînement par le flux gazeux (débit et vent ionique). Le courant d'ions mesuré en entrée de la zone de mélange $I_{mélange}$ dépend du courant entrant dans l'extracteur appelé ici $I_{extracteur}$ et des pertes sur les parois de l'extracteur I_{parois} .

La Figure 66a illustre la répartition des ions dans la décharge, l'extracteur (métallique) et dans la post-décharge. Par soucis de lisibilité du schéma, les dimensions de chaque partie, notamment celles de l'extracteur, ne sont pas respectées. Les trajectoires des ions au niveau de l'extracteur sont représentées sur la Figure 66b.

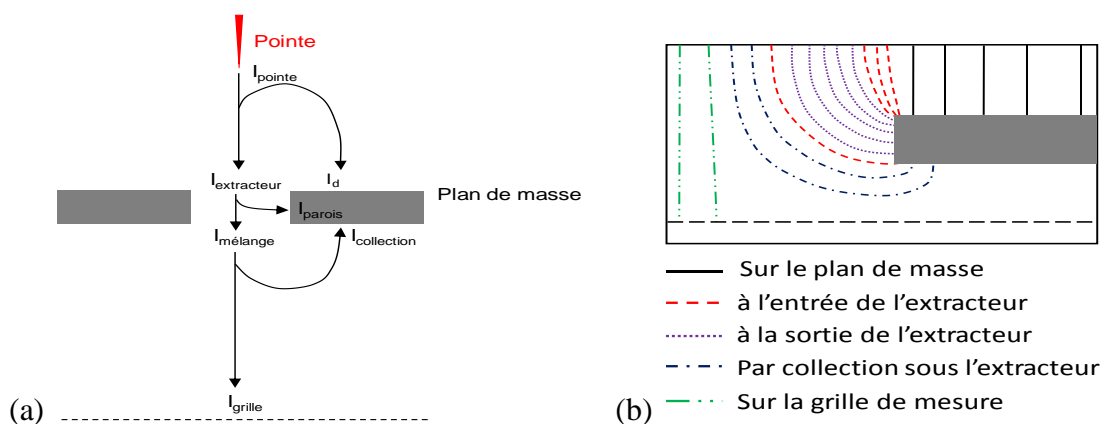


Figure 66 : répartition et trajectoires des ions dans les trois zones (décharge, extracteur et mélange)

Vu les dimensions millimétriques de l'extracteur, la majeure partie du courant de décharge (plus de 95%) est collectée sur le plan de masse. L'autre partie $I_{extracteur}$ rentre dans l'extracteur. Les répulsions électrostatiques représentent la cause principale des pertes

d'ions dans l'extracteur. Ce courant perdu dans l'extracteur est désigné par I_{parois} . Le courant qui sort de l'extracteur ($I_{\text{extracteur}} - I_{\text{parois}} = I_{\text{mélange}} = I_{\text{collection}} + I_{\text{grille}}$) est collecté en partie sur le plan de masse en aval de l'extracteur. La fraction résiduelle des ions disponibles pour la charge des aérosols est mesurée sur une grille positionnée dans le chargeur (cf. §.III.6.3).

Il est possible de distinguer trois zones de collection d'ions sur les bords d'entrée et sortie et sur les parois internes de l'extracteur I_{parois} . Le renforcement géométrique du champ sur les bords de l'extracteur accroît la collection d'ions. Pour limiter ces pertes d'ions, les bords d'entrée et de sortie sont arrondis. En effet, il a été montré que dans les mêmes conditions, le courant $I_{\text{mélange}}$ augmente d'environ 10% avec ces bords arrondis comparés aux bords droits.

La proportion du courant de décharge sortant de l'extracteur $I_{\text{mélange}}$ ne dépasse pas 5 % du courant de décharge I_d , pour un extracteur de diamètre $D=4$ mm. Plus de 95 % du courant de décharge est collecté sur le plan de masse I_d . Néanmoins, malgré cette faible proportion, un choix adapté des paramètres de l'extracteur permet d'atteindre les densités d'ions initiales requises, de l'ordre de 10^{10} cm^{-3} .

Temps de transit et temps de dérive : dans tout volume contenant des ions unipolaires, le transport des ions est contrôlé par le champ électrique créé par ces ions. L'évolution temporelle de la densité d'ions induite par ces « self-répulsions » est la suivante [WHI-61] (cf. I.2.3.3) :

$$\frac{N}{N_0} = \frac{1}{1 + N_0 \cdot \Psi \cdot \tau}$$

avec τ , le temps, N_0 , la densité d'ions initiale et Ψ , le taux d'expansion ($\Psi = B \cdot e^2 / \epsilon_0$), $1/(N_0 \cdot \Psi)$ est proportionnel à un temps. Ainsi, par analogie, le transport des ions dans l'extracteur (également contrôlé au premier ordre par self-répulsions) peut être décrit par le rapport de ces deux temps caractéristiques:

Le temps de transit des ions $t_{\text{transit ions}}$: c'est le temps moyen (i.e. τ) qu'il faut à un ion pour parcourir la distance entre l'entrée et la sortie de l'extracteur. Dans notre cas, ce temps est en première approximation, relié au temps de transit du gaz dans l'extracteur, défini comme le rapport du volume de l'extracteur sur le débit du gaz, i.e. en négligeant le vent ionique dans l'extracteur :

$$t_{transit\ gaz} = \frac{Volume_{extracteur}}{Q_{gaz}}$$

En toute rigueur, le temps de transit des ions est différent du temps de transit du gaz. Il est plus petit dans le cas où la différence de densité entre l'entrée de l'extracteur et sa sortie crée une composante axiale de champ favorable à l'extraction. D'autres cas peuvent être cités où le temps de transit des ions est plus grand que celui du gaz (cf. §.IV.3.3.2.c). Le temps de transit d'un ion dépend donc de la vitesse du gaz (qui est fonction du débit et du diamètre de l'extracteur, d'une part et de la vitesse de vent ionique sur l'axe de l'extracteur d'autre part), et de la composante axiale du champ dans l'extracteur.

Temps de dérive $t_{dérive}$: c'est le temps moyen qu'il faut pour qu'un ion atteigne la paroi de l'extracteur. Le temps de dérive dépend donc du diamètre de l'extracteur et de la composante radiale du champ électrostatique E_r créé par la charge d'espace ionique dans l'extracteur et qui est proportionnelle à la densité d'ions N . Il peut être assimilé à $1/(N_0 \cdot \Psi)$ dans la formule de Whitby.

Il est à noter que ces deux temps caractéristiques $t_{transit}$ et $t_{dérive}$ sont inter-dépendants (tous deux sont liés et contrôlent le profil de densité d'ions dans l'extracteur). En effet, toute modification du temps de transit affecte aussi le temps de dérive et inversement. A titre d'exemple, une augmentation du débit de gaz dans l'extracteur diminue (i) le temps de transit du gaz et donc des ions et (ii) la densité d'ions, à cause de la dilution, et donc la composante radiale du champ de charge d'espace ce qui a pour conséquence d'augmenter le temps de dérive.

IV.3.2. Caractérisation de l'extracteur métallique

L'extracteur des ions utilisé par de nombreux auteurs [WHI-61] pour la charge d'aérosols est un plan métallique percé. Ici, la partie non collectée sur le plan de masse en aval de l'extracteur du courant d'ions I_{grille} est mesuré à 3 cm du plan de masse (cf. §.III.6.3) pour un extracteur métallique de diamètre $D = 2$ mm et d'épaisseur $h = 1$ mm. Le débit de gaz est de 5 et 30 L.min⁻¹.

Pour les deux débits de gaz, le courant I_{grille} augmente avec le courant de décharge I_d .

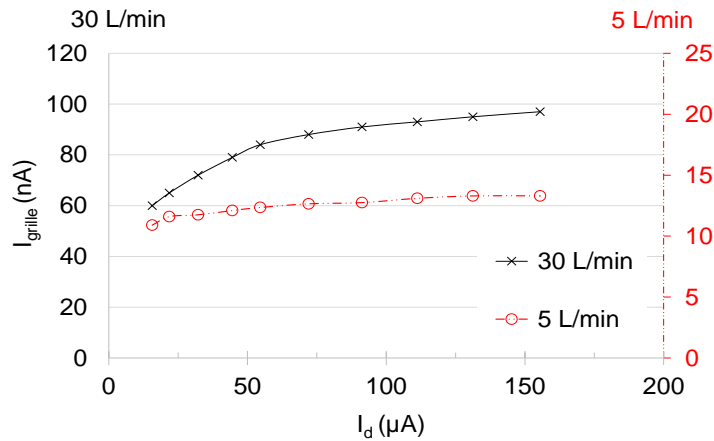


Figure 67 : courant d'ions mesuré à la grille I_{grille} pour un extracteur métallique d'épaisseur $h = 1$ mm et de diamètre $D = 2$ mm

Cependant, l'évolution de ce courant I_{grille} n'est pas linéaire avec le courant I_d . Cette non-linéarité entre I_{grille} et I_d peut être expliquée par :

- (i) Un courant entrant dans l'extracteur non linéaire avec le courant de décharge en raison des effets de bords à l'entrée de l'extracteur.
- (ii) Des pertes d'ions dans l'extracteur plus importantes liées à la fois à la densité d'ions dans l'extracteur au champ de Laplace de la pointe dans l'extracteur.
- (iii) La répartition d'ions est contrôlée par les forces électrostatiques à partir d'une densité d'ions critique. La fraction du courant d'ions collecté sous le plan en aval est donc de plus en plus importante lorsque la densité d'ions en sortie de l'extracteur augmente conduisant au "plafonnement" du courant I_{grille} . Il sera montré, par la suite, que cette hypothèse est vérifiée (cf.§.V.4.1.2). Les deux autres restent cependant probables. Pour évaluer le courant extrait $I_{mélange}$, le courant $I_{collection}$ est mesuré en séparant électriquement les plans en aval et en amont de l'extracteur de type « sandwich » (cf. §IV.3.3).

Estimation de la densité d'ions initiale N_i^0 en sortie de l'extracteur métallique : le courant $I_{mélange}$ est estimé grâce à l'évaluation du courant collecté sous l'extracteur $I_{collection}$ en extrapolant les résultats obtenus avec un extracteur sandwich (cf.§.IV.3.3). Cette extrapolation est entachée d'erreur car la polarisation de la couronne isolante (en PTPE) modifie la répartition des ions en sortie de l'extracteur. Néanmoins, le but est d'estimer un ordre de grandeur de la densité d'ions. L'estimation réalisée, suppose donc, que la répartition du courant d'ions en sortie de l'extracteur ne dépend que de la densité d'ions à la sortie de l'extracteur et de la vitesse du gaz (donc du débit de gaz pour un diamètre donné, cf. §.V.4.1.2).

La densité d'ions initiale N_i^0 pour un extracteur métallique d'épaisseur $h= 1$ mm et de diamètre $D= 2$ mm est estimée à environ 10^9 cm^{-3} . Pour augmenter cette densité, un extracteur d'épaisseur $h= 0,5$ mm est retenu. Cet ordre de grandeur est cohérent avec la densité visée pour l'étude. Un extracteur métallique permet d'obtenir les densités d'ions initiales requises pour charger les aérosols en 50 ms, i.e. pour atteindre des produits $N_i.t$ de 10^6 à 10^7 s.cm^{-3} (cf. §. II.2.2).

Cependant, comme indiqué ci-dessus (cf.§.IV.3.3.1), l'étude de l'extraction d'ions et celle de la charge des aérosols nécessitent l'évaluation du courant $I_{mélange}$. L'extracteur de type sandwich "métal-isolant (PTPE)-métal" est utilisé dans ce qui suit pour l'étude de l'extraction d'ions et dans le chapitre prochain pour l'étude de la charge dans les différentes configurations de mélange.

IV.3.3. Etude de l'extraction : extracteur métal-isolant-métal

L'extracteur de type "sandwich" utilisé pour l'étude est représenté sur la Figure 68 et décrit au paragraphe § III.6.3.

Afin de limiter l'effet de la polarisation des parois du PTPE sur le courant entrant dans l'extracteur $I_{extracteur}$ et sur la répartition d'ions en post-décharge, les bords de l'isolant sont chanfreinés à $\sim 30^\circ$. De plus, les bords des deux couches métalliques en entrée et en sortie de l'extracteur sont arrondis afin s'affranchir de l'effet de bords sur les pertes d'ions (cf.§.IV.3.1). Une partie du courant entrant dans l'extracteur $I_{extracteur}$ est collectée sur les parois de la première couche métallique (I_{parois} flèche du dessus sur la Figure 68). Les parois isolantes collectent aussi des ions, ce qui conduit à sa polarisation (I_{parois} flèche du dessous sur la Figure 68). Ces ions sont essentiellement drainés vers le plan métallique en amont de l'extracteur. En effet, le diamètre du plan en aval de l'extracteur est plus grand que celui des deux autres couches ($D'=3$ mm contre $D= 2$ mm).

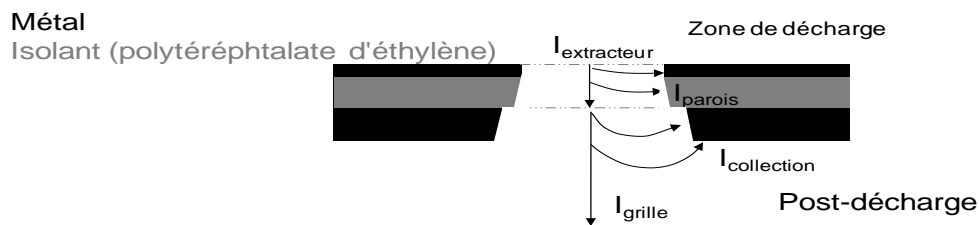


Figure 68 : répartition d'ions de l'entrée de l'extracteur à la grille de mesure.

Cela a pour effet de rallonger le chemin de fuite vers le plan en aval de l'extracteur et favorise donc le drainage des ions collectés sur l'isolant vers le plan de masse en amont

(cf. §. III.6.3). Le courant d'ions qui sort de l'orifice de la couche isolante est dénommé courant $I_{mélange}$. Une partie de ce courant est collectée sur le plan métallique $I_{collection}$ et l'autre sur la grille I_{grille} . La répartition de ces courants est étudiée au paragraphe (cf.§.V.4.1.2).

Notations : Le champ électrique en chaque point est la somme de trois composantes de champ : Ici, nous adoptons une notation spécifique pour éviter toute ambiguïté sur le type du champ (Laplace, charge d'espace ou surfacique), la/les composante(s) axiale ou radiale du champ en question, la zone où est considéré le champ (zone de décharge, extracteur ou zone de mélange) et l'origine de la création de ce champ. La forme générale est donc donnée par :

$E_{\text{type du champ}(L, \rho, \sigma) ; \text{créé par } (\rho_1, \sigma_1, \rho_2, \dots); \text{composante } (r,z)}$ (zone considérée, notée 1 ou 2 ou 3), avec :

- Entre parenthèses: la zone considérée, (1 pour la décharge, 2 pour l'extracteur et 3 pour la zone de mélange),
- En indice : la composante considérée r pour radiale et z pour axiale (parallèle à l'axe de symétrie de la pointe et de l'extracteur),
- En exposant: le type de champ (L pour Laplace, ρ pour charge d'espace et σ pour la polarisation de surface), puis la zone dans laquelle le champ considéré est créé (1, 2 ou 3).

Dans le cas où il n'y a pas de précision sur l'indice ou l'exposant cela signifie que tous les points sont pris en compte.

Exemple : $E_z^{\sigma,2}(2)$: la composante axiale z du champ surfacique σ , créé par la polarisation de surface de l'extracteur « 2 » en indice, dans l'extracteur « (2) ».

IV.3.3.1. Géométrie de l'extracteur → courant entrant et pertes

Afin de déterminer la géométrie de l'extracteur, l'influence de la forme et le diamètre de l'orifice sur l'extraction des ions est étudiée.

a. Polarisation des parois isolantes selon la forme

Ce paragraphe vise à illustrer l'effet de la composante axiale du champ surfacique créé par la polarisation de surface de l'isolant $E_z^{\sigma,2}(1)$ sur le courant entrant dans l'extracteur selon le diamètre et la forme des parois. En effet, nous allons montrer que cette composante de champ influe sur les pertes d'ions à l'entrée de l'extracteur, ce qui diminue $I_{extracteur}$, notamment pour de petits diamètres ($D= 1$ mm).

Pour rendre compte de ces effets, le courant $I_{mélange}$ a été mesuré dans les mêmes conditions avec des bords droits de la couche isolante (PTPE), puis avec des bords chanfreinés (cf. Figure 63) pour trois diamètres d'extracteur différents ($D=1, 2$ et 4 mm).

Afin de limiter les divergences des conditions d'expérience, le temps de transit est gardé constant. Pour cela, le débit est contrôlé pour chaque diamètre afin d'avoir une vitesse de gaz dans l'extracteur de 26 m/s (pour $Q_{ions} = 1,3 ; 5$ et 20 L.min⁻¹ pour $D = 1, 2$ et 4 mm respectivement). Notons que le chanfrein des bords conduit à une augmentation du volume de l'extracteur qui implique que la vitesse du gaz dans l'extracteur plus faible et donc un temps de transit plus grand et par conséquent à une probable augmentation des pertes.

La Figure 69 représente le rapport des courants $I_{mélange}$ mesurés avec et sans chanfrein des parois isolantes ($I_{mélange} (chanf.) / I_{mélange} (droit)$) en fonction du courant I_d . L'évolution de ce rapport permet de rendre compte de l'influence de la polarisation des parois sur l'injection du courant $I_{extracteur}$ et sur la réduction des pertes dans et en aval de l'extracteur.

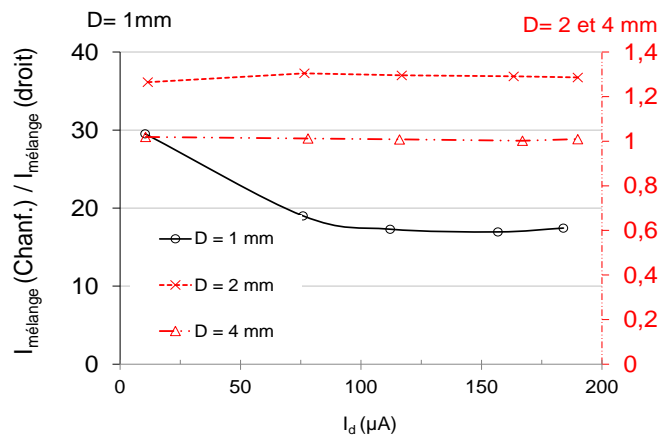


Figure 69 : influence de la polarisation de surface de l'isolant sur l'injection des ions dans l'extracteur et les pertes d'ions aux parois

Pour un diamètre d'extracteur $D = 1$ mm, le rapport des courants $I_{mélange}$ mesurés pour des bords chanfreinés et celui pour des bords droits varie de 18 à plus de 30 . En effet, pour des bords droits et pour un courant de décharge de 160 μA , le courant $I_{mélange}$ est très faible 6 nA contre 85 nA pour les bords chanfreinés.

Le faible courant $I_{mélange}$ mesuré avec des bords droits est lié à une augmentation des pertes sur les bords du plan en amont de l'extracteur causée par la polarisation de surface du PTPE: pour un diamètre d'extracteur $D = 1$ mm, la polarisation des bords du PTPE est le processus dominant sur les pertes des ions à l'entrée de l'extracteur. Cependant, pour $D=2$ mm, l'influence est très faible (le rapport vaut environ $1,3$) et pour $D=4$ mm,

l'influence des parois isolantes est négligeable puisque le rapport ne dépasse pas 1,05. Plusieurs éléments d'interprétation sont donnés ci-dessous :

- *Effet du chanfrein* : les lignes de champ créé par la polarisation de surface de l'isolant PTPE pour des parois à bords droits et chanfreinés sont représentées sur la Figure 70 (les ions sur la surface sont symbolisés par des signes '+'). Les lignes de champ des autres composantes de champ dans l'extracteur ne sont pas représentées.

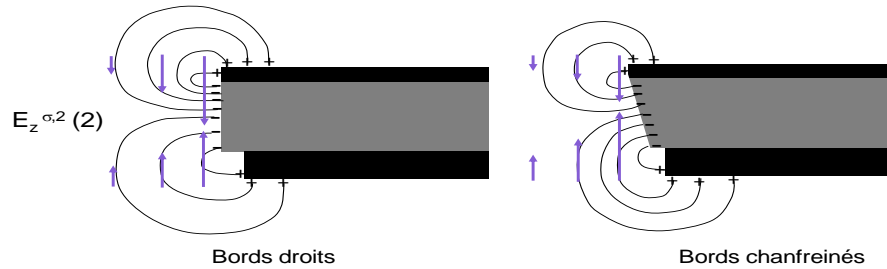


Figure 70 : représentation des lignes de champ créé par la polarisation des bords isolants de l'extracteur

Pour rendre compte de l'effet de la polarisation des parois isolantes sur $I_{extracteur}$, la composante axiale du champ de surface est tout d'abord considérée $E_z^{\sigma,2}(2)$. Le chanfrein a un effet favorable aussi bien à l'entrée de l'extracteur qu'à la sortie. A l'entrée, le champ axial limitant l'injection des ions dans l'extracteur est réduit. À la sortie de l'extracteur, le champ axial, favorable à l'extraction, augmente avec le chanfrein.

Il faut noter que la composante radiale créée par le chanfrein $E_r^{\sigma,2}(2)$, est aussi favorable à l'extraction d'ions car elle permet de limiter les pertes d'ions dans et en aval de l'extracteur. Par conséquent, ces deux effets tendent tous les deux à augmenter $I_{mélange}$.

Effet du diamètre de l'extracteur : l'effet de la polarisation des parois sur l'injection d'ions dans l'extracteur et sur les pertes dans et en aval de l'extracteur est d'autant plus important que le diamètre est petit. Cela est dû à la décroissance en $1/r^2$ du champ électrostatique (r étant la distance par rapport à la charge). Plus le diamètre de l'extracteur est faible et plus le champ surfacique axial s'oppose à l'arrivée des ions dans l'extracteur, mais aussi les pertes dans et en aval de l'extracteur

Confirmation de l'effet de la composante axiale du champ surfacique sur le courant entrant : Il faut signaler que pour un diamètre $D=1$ mm, avec des parois droites en époxy, le courant $I_{mélange}$ vaut 60 nA contre 6 nA pour le PTPE. L'effet de la polarisation de surface cité ci-dessus, qui limite $I_{extracteur}$ avec le PTPE, expliquerait ce résultat, sachant que

la composante radiale qui limite les pertes dans l'extracteur est moins intense pour l'époxy. En effet, la résistivité de surface du PTPE est 10 à 100 fois plus grande que celle de l'époxy, le potentiel de surface est donc plus important dans le cas du PTPE.

Pour limiter l'effet de la polarisation de surface sur l'extraction d'ions, qui dépend en plus du diamètre de l'extracteur, les bords du l'isolant (PTPE) sont chanfreinés dans toute l'étude.

b. Diamètre d'extracteur

Le courant $I_{mélange}$ dépend, du courant entrant $I_{extracteur}$ et des pertes dans l'extracteur. Pour une forme de parois d'extracteur donnée, $I_{extracteur}$ dépend, au premier ordre, du courant de décharge et du diamètre de l'extracteur.

L'effet du diamètre sur le courant $I_{mélange}$ a été étudié soit à vitesse de gaz constante soit à débit constant, pour trois diamètres 1, 2 et 4 mm. L'évolution du courant $I_{mélange}$ en fonction du diamètre pour différents courants de décharge est donnée sur la Figure 71, pour une vitesse de gaz dans l'extracteur constante d'environ 26 m.s^{-1} (pour $Q_{ions} = 1,3 ; 5$ et 20 L.min^{-1} pour $D=1, 2$ et 4 mm respectivement) et sur la Figure 71b pour un débit de gaz de 5 L.min^{-1} .

Pour la distance inter-électrodes choisie ($d_{gap} = 13 \text{ mm}$), la vitesse du vent électrique au niveau du plan est de moins de 6 m.s^{-1} pour un courant de décharge de $60 \mu\text{A}$ [BEQ-02]. La vitesse du vent électrique représente donc moins de 20% de la vitesse créée par le débit de gaz (26 m.s^{-1}). Elle est supposée constante pour les différents diamètres d'extracteur.

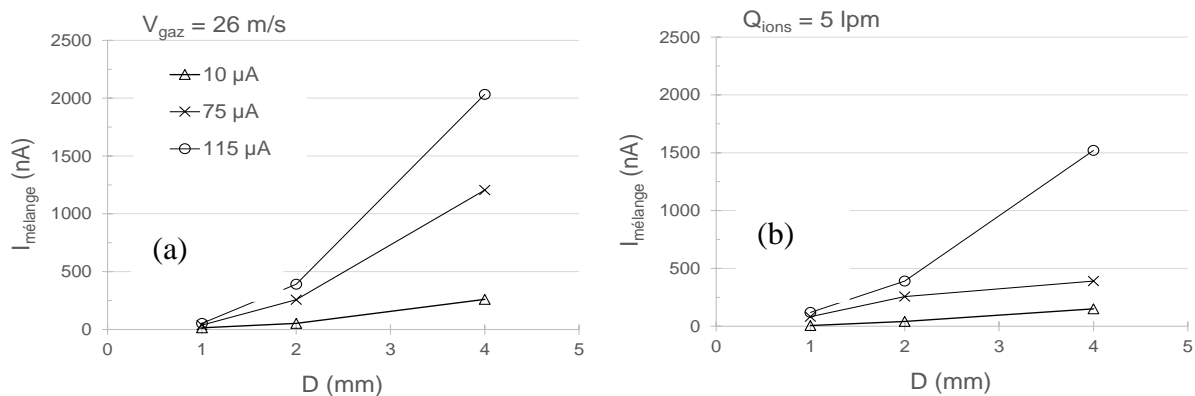


Figure 71 : évolution du courant $I_{mélange}$ en fonction du diamètre d'extracteur pour différents courant de décharge. (a): à vitesse de gaz constante, (b) à débit constant

Dans les deux cas, le courant $I_{mélange}$ augmente avec le diamètre de l'extracteur quel que soit le courant de décharge.

A vitesse du gaz quasi-constante dans l'extracteur (en négligeant la variation du vent ionique) sur la Figure 71a et pour un courant de décharge constant, l'augmentation du débit de gaz (pour compenser l'augmentation du diamètre et conserver une vitesse de gaz constante) se traduit par des densités d'ions plus faibles. Le temps de dérive dépend de la densité d'ions qui définit le champ radial induit par la charge d'espace et du diamètre de l'extracteur qui fixe la distance à parcourir dans ce champ. La réduction des pertes aux parois (augmentation du temps de dérive) justifie l'augmentation du courant $I_{mélange}$.

A débit constant, $Q_{ions} = 5 \text{ L.min}^{-1}$, pour un temps de transit 4 fois plus faible pour un diamètre de 4 mm que de 2 mm, le courant $I_{mélange}$ est plus de 5 fois plus grand. Même dans ces conditions défavorables à l'extraction pour de grands diamètres, le courant $I_{mélange}$ augmente avec le diamètre. Ces résultats semblent montrer que la croissance du courant entrant dans l'extracteur avec le diamètre permet de compenser les pertes dans l'extracteur.

L'évaluation du courant $I_{extracteur}$ (cf.§.IV.2.2.3) permet d'estimer l'efficacité d'extraction $I_{mélange}/I_{extracteur}$. Pour un diamètre d'extracteur croissant, l'efficacité d'extraction diminue, à l'inverse des courants entrant $I_{extracteur}$ et sortant $I_{mélange}$ de l'extracteur. En raison d'un courant $I_{extracteur}$ plus élevé pour des diamètres plus grands et de l'effet de la composante axiale du champ de Laplace $E_z^{L1}(2)$ qui est favorable à l'extraction d'ions, le courant $I_{mélange}$ augmente avec le diamètre.

IV.3.3.2. Extraction à géométrie fixée selon les temps caractéristiques

Le couplage des temps caractéristiques $t_{transit}$ et $t_{dérive}$ est analysé à partir d'une étude paramétrique (courant de décharge, débit de gaz, et champ de Laplace axial dans l'extracteur) dans la forme d'extracteur définie au paragraphe précédent (bords biseautés) et pour un diamètre de $D=2 \text{ mm}$ (diamètre retenu au paragraphe §.V.4.1.2.b)

a. Courant de décharge: champ de charge d'espace dans l'extracteur

Rappelons que le temps de dérive $t_{dérive}$ dépend au premier ordre du diamètre de l'extracteur et du champ radial dans l'extracteur. La composante radiale du champ est égale à la somme des composantes radiales des champs électriques (champ de Laplace, de charge d'espace et de polarisation de surface).

Le courant de décharge est contrôlé par la tension appliquée à la pointe de décharge. L'augmentation de la tension implique une augmentation : (i) du courant entrant dans l'extracteur $I_{extracteur}$ (ii) de la densité d'ions à l'entrée et dans l'extracteur donc (iii) du

champ de charge d'espace dans l'extracteur mais aussi (iv) du champ de Laplace de la pointe ($E_r^{L,1}(2)$) et (v) de polarisation de surface des parois isolantes (PTPE).

La Figure 72 montre (a) le courant $I_{mélange}$ et (b) le rapport $I_{mélange}/I_d$ en fonction du courant I_d pour un extracteur de diamètre $D=2$ mm et des débits de gaz $Q_{ions}=5$ et 30 L.min⁻¹. Pour un diamètre et un débit fixes, le temps de transit du gaz dans l'extracteur est constant.

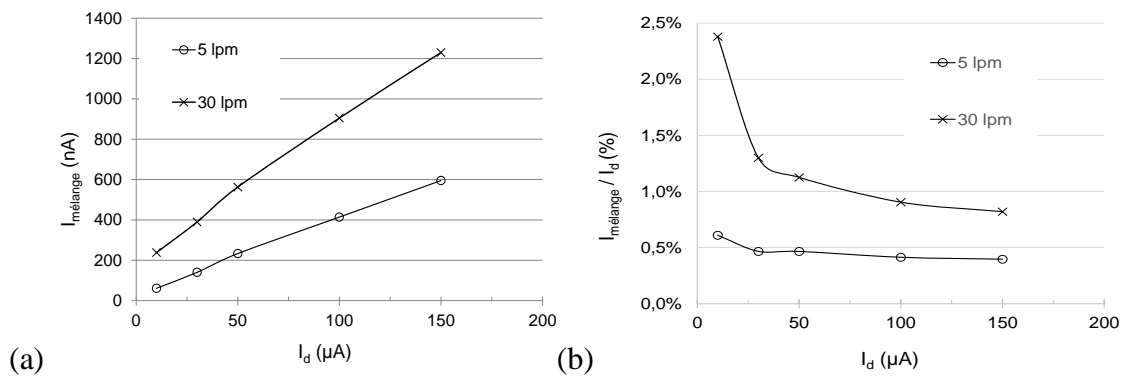


Figure 72 : (a) courant $I_{mélange}$ et (b) rapport $I_{mélange}/I_d$ en fonction du courant I_d

Le courant $I_{mélange}$ croit quasi-linéairement en fonction du courant I_d . L'augmentation de $I_{mélange}$ s'explique alors par l'augmentation de $I_{extracteur}$ qui augmente avec I_d (cf. §.IV.2.2.3).

Les augmentations des deux champs de Laplace $E_z^{L,1}(2)$ et de polarisation de surface $E_r^{\sigma,2}(2)$ sont favorables à l'extraction des ions sur les parois de l'extracteur. Cependant, l'augmentation du champ de charge d'espace $E_r^{\rho,2}(2)$ réduit le temps de dérive des ions et tend à « pousser » les ions vers les parois.

L'évolution du rapport $I_{mélange}/I_d$ rend compte de l'évolution du champ total dans l'extracteur sur l'extraction d'ions. Le courant $I_{mélange}$ augmente certes avec le courant I_d mais le rapport $I_{mélange}/I_d$ décroît en fonction du courant I_d . La proportion d'ions collectés sur les parois augmente donc avec le courant entrant dans l'extracteur ($I_{extracteur}$ et la densité d'ions à l'entrée de l'extracteur qui en dépend. Cette décroissance de l'efficacité d'extraction des ions de la décharge ($I_{mélange}/I_d$) avec le courant de décharge implique que l'effet du champ radial de charge d'espace E_ρ est dominant par rapport à l'augmentation du champ électrique axial deux autres champs E_L et E_σ qui auraient pour effet d'augmenter le rapport $I_{mélange}/I_d$.

Un courant I_d plus élevé conduit donc à augmenter la composante radiale du champ de charge d'espace ce qui réduit le temps de dérive des ions. Les effets illustrés dans ce paragraphe sont identiques quel que soit le débit dans l'extracteur allant de 5 à 30 L.min⁻¹.

b. Débit de gaz

Les évolutions du courant $I_{mélange}$ selon le débit de gaz pour un diamètre d'extracteur $D=2$ mm, et différents courants de décharges dans les régimes Trichel (10 et 30 μA) et Couronne (100 et 150 μA) sont illustrées par la Figure 73.

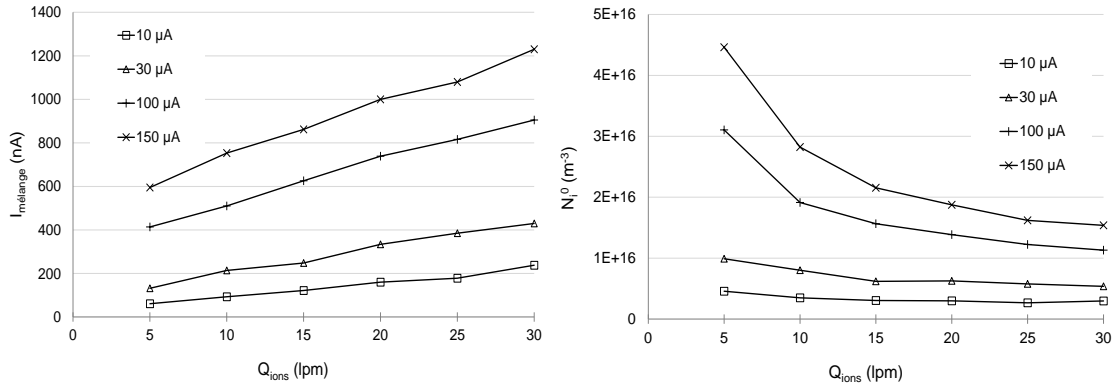


Figure 73 : évolution du (a) courant $I_{mélange}$ et (b) de la densité d'ions estimée N_i^0 en fonction du débit

À courant de décharge constant, le courant $I_{mélange}$ augmente linéairement avec le débit. En effet, le débit affecte les temps caractéristiques ($t_{transit}$ et $t_{dérive}$). L'augmentation du débit favorise l'extraction des ions par (i) réduction du temps de transit et (ii) augmentation du temps de dérive induit pas la réduction de la densité d'ion par dilution et donc du champ radial de charge d'espace.

Enfin, quel que soit le courant de décharge, la densité d'ions initiale en entrée de la zone de mélange N_i^0 décroît. Cette décroissance de la densité d'ions implique une augmentation du courant $I_{mélange}$ liée à l'augmentation du débit et ne compense pas l'effet de dilution de la charge d'espace.

c. Champ de Laplace dans l'extracteur

Le temps de transit des ions dans l'extracteur ainsi que les variables dont il dépend ont été définis au § IV.3.1. Dans ce paragraphe, une composante de champ de Laplace axial est appliquée dans le but d'augmenter la vitesse axiale des ions et donc diminuer leurs temps de transit dans l'extracteur. Cependant ce champ affecte également le courant d'ions entrant et la densité d'ions dans l'extracteur.

Cet effet est illustré ici par la polarisation de 0 à -1200 V du plan en amont de l'extracteur. La polarité choisie est négative. La tension de la pointe est adaptée pour obtenir le même champ de Laplace dans l'espace inter-électrodes et donc le même courant de décharge. Le

diamètre de l'extracteur est $D = 2 \text{ mm}$ et le débit $Q_{ions} = 5 \text{ L.min}^{-1}$, rappelons que la vitesse du gaz dépend du débit, de la section de passage et du vent électrique.

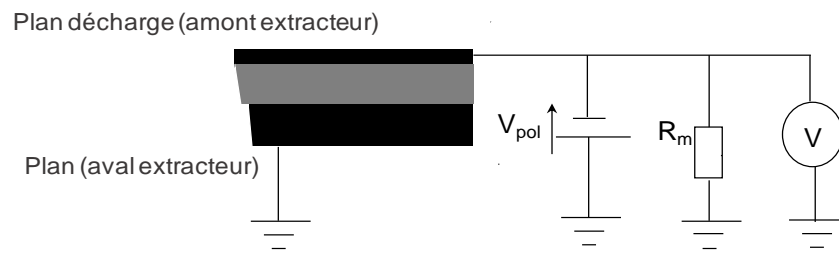


Figure 74 : schéma du dispositif d'étude de l'effet de polarisation du plan sur l'extraction

Le champ axial ainsi créé dans l'extracteur est donc contrôlée par la différence de potentiel entre les plans en amont et en aval de l'extracteur. Le champ résultant dans l'extracteur, supposé proportionnel à V_{pol} , doit être inférieur à la rigidité diélectrique de l'isolant (PTPE). En effet, l'amorçage d'une décharge entre les deux plans produirait des ions et entrainerait donc des artefacts pour la mesure du courant $I_{mélange}$. Pour éviter cet artefact, nous avons d'abord vérifié que le courant de fuite du plan polarisé vers le plan en aval de l'extracteur est nul, quand le plan en amont est polarisé et que la tension à la pointe est nulle. L'effet du temps de transit, contrôlé par le champ de Laplace axial $E_z^{L,2}(2)$, est illustré sur la Figure 75 par l'évolution du courant $I_{mélange}$ en fonction de la tension de polarisation de l'extracteur pour un courant de décharge constant de $150 \mu\text{A}$.

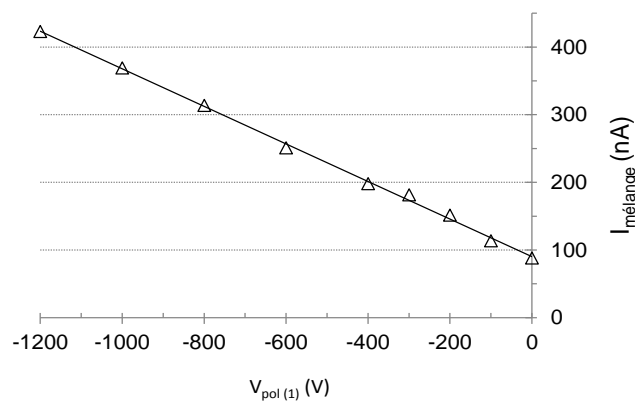


Figure 75: courant $I_{mélange}$ selon la tension de polarisation V_{pol}

Le courant $I_{mélange}$ augmente linéairement avec la tension de polarisation V_{pol} . Les lignes de champ créé par la polarisation du plan sont représentées sur la Figure 76. Bien que les autres composantes du champ E_ρ et E_σ soient affectées, elles ne sont pas représentées. En effet, la composante du champ axiale augmente la vitesse des ions ce qui conduit, à courant $I_{extracteur}$ constant à une diminution de la charge d'espace et donc à augmenter le temps de dérive.

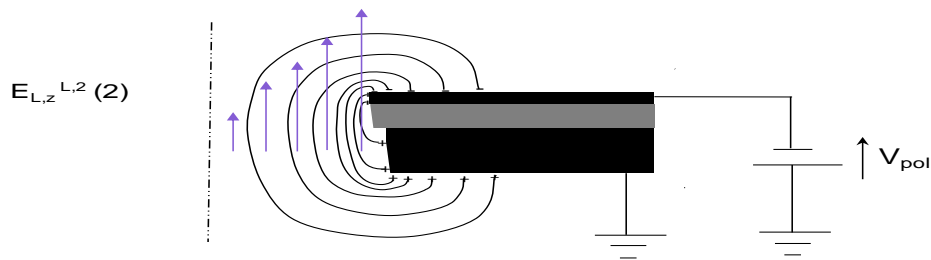


Figure 76 : représentation du champ électrique créé par la polarisation du plan 1.

Le temps de séjour des ions à proximité des parois diminue, ces ions qui sans champ supplémentaire sont collectés aux parois parviennent donc à sortir de l'extracteur.

La polarisation des parois isolantes crée une composante de champ radiale sur les bords de l'extracteur. Ce champ radial est défavorable à la collection des ions sur les bords supérieurs (réduction du temps de dérive) et l'augmente sur les bords inférieurs.

En conclusion, la composante axiale de champ de Laplace augmente la vitesse axiale des ions et diminue donc leurs temps de transit dans l'extracteur. De plus, l'augmentation des vitesses axiales des ions se traduit également par une réduction de la densité d'ions, donc du champ de charge d'espace radial qui augmente le temps de dérive. Enfin la purge des ions dans l'extracteur augmente probablement le courant d'ions entrant dans l'extracteur.

Le champ de Laplace dans l'extracteur permet donc d'optimiser l'extraction des ions, en réduisant le temps de transit des ions (réduction des pertes) et en augmentant à la fois le temps de dérive et le courant entrant dans l'extracteur $I_{extracteur}$. Toutefois, cette méthode impose l'utilisation d'alimentation supplémentaire et ne sera pas retenue dans le chargeur final.

d. Transport EHD des ions selon le rapport $t_{transit}/t_{dérive}$

Le transport d'ions dans l'extracteur est contrôlé par une compétition électrohydrodynamique. Bien que la composante du champ radial est induite par la charge d'espace et non pas par polarisation d'une électrode comme dans le cas des ESP, cette compétition EHD peut être décrite par le formalisme de Whitby (§.I.2.3.3). Ce formalisme donne l'efficacité d'extraction définie comme la densité (de particules chargées) en sortie du système sur la densité à l'entrée du système en fonction du rapport des temps $t_{dérive}/t_{transit}$ (cf.§.I.2.3.3). Ainsi, à débit constant, en négligeant l'évolution des vitesses des ions liées à la vitesse du vent électrique, le rapport $I_{mélange}/I_{extracteur}$, relatif à l'efficacité d'extraction aussi appelée pénétration ionique, dépend du rapport des densités d'ions N_i^0/N_e .

Ce rapport du temps est donné en fonction de la surface de collection, du débit de gaz et du champ électrostatique dans l'extracteur. L'évolution du champ dans l'extracteur n'étant pas connue, notamment pour l'extracteur sandwich où le champ total est la somme de plusieurs composantes de Laplace, de charge d'espace et de polarisation de surface, différentes hypothèses sont posées pour calculer ce rapport de temps :

- (i) Estimation du courant $I_{extracteur}$: supposé proportionnel à la surface de l'extracteur et indépendant du débit entre 5 et 30 L.min⁻¹ avec un coefficient de proportionnalité extrapolé à partir des profils de densité du courant au plan,
- (ii) L'effet de la composante axiale du champ sur le temps de transit des ions est négligé,
- (iii) La variation de la composante radiale du champ due à la variation de polarisation des parois isolantes et du champ de Laplace avec le courant de décharge sont négligées : seule la variation du champ de charge d'espace est prise en compte, (iv) Les effets de bord à l'entrée et la sortie de l'extracteur sont négligés,

Le rapport des temps peut être défini comme: $t_{transit} / t_{derive} \propto (D^2 \cdot h / Q_{ions}) / (D / N_{radiale\ ions})$.

$$V_{radiale\ ions} = \mu_i \cdot E_r$$

Dans notre cas où l'épaisseur de l'extracteur est constante cette relation devient :

$$t_{derive} / t_{transit} \propto \mu_i \cdot E_r \cdot D / Q_{ions}$$

En tenant en compte des hypothèses énoncées ci-dessus, ce rapport est proportionnel à :

$$t_{derive} / t_{transit} \propto N_e \cdot D / Q_{ions},$$

avec N_e , la densité d'ions à l'entrée de l'extracteur ($N_e = I_{extracteur} / e \cdot Q_{ions}$)

La mesure du courant $I_{mélange}$ et l'estimation du courant $I_{extracteur}$ permettent de remonter à l'efficacité d'extraction ($I_{mélange} / I_{extracteur}$) (cf.§.IV.3.3.2.d). Une estimation du courant $I_{extracteur}$ est obtenue grâce au profil de densité ionique au plan (cf.§.IV.2.2.3). Cependant, ce profil est mesuré sur le plan de masse mais pas au niveau du trou. L'extrapolation du profil permet d'avoir une estimation du courant $I_{extracteur}$ par intégration du profil sur la surface du trou.

Le temps de transit $t_{transit}$ est proportionnel à D / Q_{ions} et le temps de t_{derive} est proportionnel à $1 / N_e$. L'efficacité d'extraction dans différentes conditions est tracée en fonction du rapport $t_{transit} / t_{derive}$ proportionnel à $N_e \cdot D / Q_{ions}$ (cf. Figure 77)

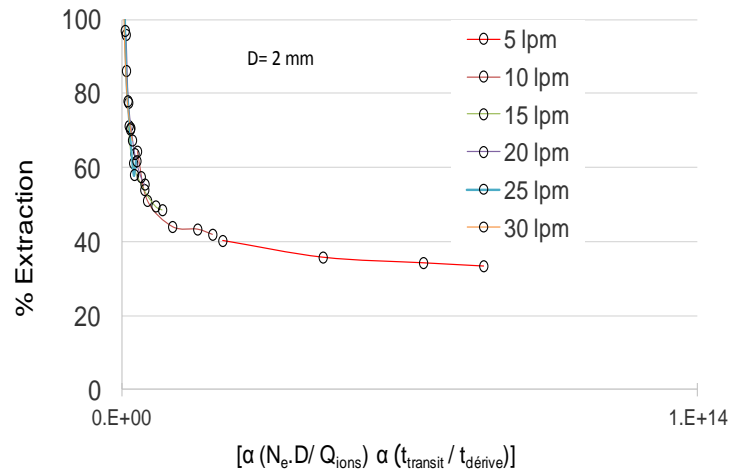


Figure 77 : efficacité d'extraction en fonction du rapport $t_{transit}/t_{dérive}$ ($D=2$ mm, $Q_{ions} \in [5 - 30]$ L.min⁻¹ et $I_d \in [10-150]$ μ A)

Malgré l'approximation faite sur le courant $I_{extracteur}$ et les hypothèses citées ci-dessus, les courbes ont la même allure que celles obtenues avec le formalisme de Whitby (cf.§.I.2.3.3). Cela nous permet de confirmer que l'efficacité d'extraction est contrôlée au premier ordre par le rapport des $t_{transit}/t_{dérive}$, malgré le fait que le champ E_{radial} qui contrôle le temps $t_{dérive}$ dépende de la densité d'ions et du champ de charge d'espace qui en résulte.

Effet du diamètre de l'extracteur :

Pour un diamètre d'extracteur $D=2$ mm, les courbes obtenues dans différentes conditions se superposent. Cependant, pour les diamètres $D=1$ et 4 mm, les courbes d'efficacité d'extraction sont décalées.

Pour un diamètre $D=1$ mm, l'efficacité d'extraction est plus faible qu'à $D=2$ mm. Cet effet est probablement dû au champ surfacique créé par la polarisation des parois isolantes qui limite le courant entrant dans l'extracteur $I_{extracteur}$ discuté au paragraphe (cf.§.IV.3.3.1.a). En effet, le chanfrein des parois permet certes de limiter cet effet sans le supprimer intégralement.

L'efficacité d'extraction plus faible dans ce cas est liée au premier ordre à un courant $I_{extracteur}$ plus faible et non pas à des pertes plus importantes.

Pour un diamètre $D=4$ mm, l'efficacité d'extraction est légèrement plus faible pour les faibles densités N_e comparée au diamètre $D=2$ mm. Cependant, pour un rapport $t_{transit}/t_{dérive}$ croissant, lié à une densité d'ions N_e plus grande, l'efficacité d'extraction est plus élevée. Cette augmentation, peut être expliquée par l'effet du champ de Laplace sur l'extraction

d'ions. En effet, les lignes de champ de Laplace traversent l'extracteur pour se refermer sous le plan. Les ions suivent ces lignes de champ ce qui augmente l'efficacité d'extraction

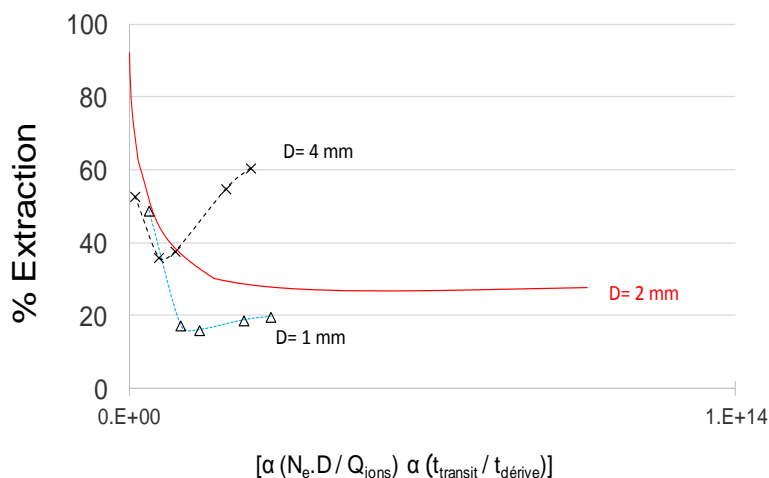


Figure 78 : efficacité d'extraction en fonction du rapport $t_{transit}/t_{dérive}$ ($D=1$ et 4 mm et $I_d \in [10-150] \mu A$)

Cet effet est d'autant plus important que la surface de l'extracteur est grande.

IV.3.3.3. Choix des paramètres d'extraction

Débits d'ions et d'aérosol : Rappelons que le courant de particules chargées, dont dépend la sensibilité de l'instrument de mesure, dépend du nombre moyen de charges par particule q_p , de la concentration de l'aérosol N_p et du débit d'aérosol Q_a ($I_p \propto q_p \cdot N_p \cdot Q_a$). Le nombre moyen de charges par particule dépend, pour un aérosol de taille donné, du produit $N_i \cdot t$. Or, la densité d'ions extraite est d'autant plus élevée que le débit de gaz est faible (jusqu'à 2 fois à $5 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ comparé à $30 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$). Cependant, pour avoir un courant de particules chargées supérieur à la limite de détection de quelques fA, des débits d'aérosol de quelques dizaines de litres par minutes sont nécessaires (cf.§.II.2.2). Le débit d'ions doit donc être du même ordre de grandeur pour éviter la dilution lors du mélange ions-aérosols.

Diamètre de l'extracteur : pour les diamètres et dans les gammes des débits étudiés, le courant $I_{mélange}$ est d'autant plus élevé que le diamètre est élevé même à débit constant. Cependant, la répartition d'ions en zone de mélange dépend de la vitesse initiale en entrée de la zone de mélange. Cette répartition est fonction du diamètre et du débit sera traité au paragraphe §.V.4.1.2.b.

IV.4. Conclusions

L'étude paramétrique de la décharge a d'abord permis de choisir les différents paramètres électriques et géométriques en géométries pointe-plan (distance inter-électrodes,

$d_{gap}= 13$ mm et rayon de courbure, $R_c= 80$ μm). Ces paramètres permettent de répondre aux contraintes de l'étude dans la gamme de pression de la zone de décharge employées par la suite (1020 mbar à 1350 mbar). En effet, un compromis entre la stabilité de la source d'ions et une tension maximale de 20 kV pour limiter l'encombrement du système avec une durée de vie de la pointe de quelques centaines d'heures. L'effet des parois sur le courant de décharge et sa répartition au plan a été étudié. Le rayon de la zone de décharge choisi est 5 cm pour limiter l'effet des parois sur le champ et le courant de décharge à 10% tout en limitant l'encombrement du système.

Le deuxième point concerne l'effet du débit de gaz en configuration pointe-trou sur le courant de décharge et la répartition de ce courant au niveau du plan de masse. L'effet du flux de gaz sur le courant de décharge est négligeable. Cependant, la répartition du courant d'ions au niveau du plan de masse est affectée par le flux de gaz. En effet, il a été démontré que le flux de gaz permet le confinement électro-hydrodynamique des ions vers le trou d'extraction.

Concernant l'extracteur, il a été montré qu'avec un extracteur métallique de faible épaisseur ($h=0,5$ mm), de diamètre millimétrique et avec des débits d'ions de quelques dizaines de $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$, la densité d'ions extraite peut atteindre $N_i^0=10^{10}$ cm^{-3} , ce qui répond aux contraintes du chargeur à développer. Dans cet extracteur, le courant collecté sous le plan de masse en aval de l'extracteur ne peut être mesuré. Seulement une partie du courant extrait est alors mesuré I_{grille} . Cependant, pour l'étude de l'extraction d'ions et du mélange ions-aérosol, la mesure du courant total $I_{mélange}$ est nécessaire. Pour mesurer le courant $I_{collection}$, un extracteur de type "sandwich" métal-isolant-métal, qui permet de séparer électriquement les plans de masses en aval et en amont de l'extracteur, a alors été développé en optimisant sa forme.

Grace à cet extracteur, il a été montré que l'efficacité d'extraction dépend au premier ordre du rapport du temps de dérive sur le temps de transit des ions. En effet, le transport électro-hydrodynamique des ions résulte au premier ordre d'une compétition entre les forces électrostatiques qui tendent à collecter les ions sur les masses et la convection qui tend à les entrainer dans le sens du gaz. Cette étude a permis aussi de choisir les paramètres de l'extraction à savoir le débit de gaz $Q_{ions} = 30$ $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ et le diamètre de l'extracteur $D=2$ mm.

V. ETUDE DU MELANGE IONS-AEROSOLS

V.1. Introduction

Dans le chapitre précédent la source d'ions pointe-plan troué a été caractérisée et optimisée en termes de stabilité temporelle du courant d'ions et des densités d'ions initiales N_i^0 en entrée de la zone de mélange (de l'ordre de 10^{10} cm^{-3}). Pour de telles densités d'ions unipolaires, les répulsions électrostatiques conduisent à une décroissance de la densité d'ions jusqu'à 4 ordres de grandeurs en 50 ms. L'originalité du système à développer repose donc sur l'hétérogénéité des densités d'ions unipolaires ($N_i^0 > 10^9 \text{ cm}^{-3}$) requises pour compenser le temps de charge inférieur à 50 ms. Deux mélanges ions-aérosol sont étudiés pour optimiser la charge de l'aérosol. Le but est d'obtenir un produit $N_i.t$ de l'ordre de quelques 10^6 s.cm^{-3} pour atteindre des niveaux de charge compatibles avec la limite de détection et pour limiter la charge partielle des particules les plus fines. Il faut cependant limiter l'écart sur le produit $N_i.t$ (appelé ici $\Delta N_i.t$) vu par des particules de même taille et donc l'élargissement potentiel des distributions de charge (cf. §.II.2.3). Le chargeur doit respecter deux autres critères, une relation bijective entre la mobilité et le diamètre pour séparer les particules en différentes gammes de mobilités/tailles et la linéarité entre le courant de particules chargées et la concentration pour évaluer la concentration d'aérosol par gamme de taille à partir du courant de particules chargées. Ce chapitre est focalisé sur le contrôle du produit $N_i.t$ moyen évalué à partir de la mesure du nombre moyen de charge par particule pour une taille d'aérosol.

L'objectif de ce chapitre est de quantifier l'effet des paramètres, qui entrent en jeu dans le processus de charge par diffusion dans des densités d'ions hétérogènes (détaillés au §.V.2). La comparaison des différents mélanges selon les critères de sélection présentés au § VI.2.1 permet alors de choisir le chargeur final et de le caractériser en termes de relations charge-diamètre et de distribution de charge selon le diamètre.

Après une présentation synthétique de la problématique scientifique sur la charge en temps court ($t < 50 \text{ ms}$), une étude préliminaire dans une configuration de mélange de type jet d'ions et d'aérosol perpendiculaire dissymétrique permet de définir les configurations de mélange à étudier. Dans ces configurations, la répartition du courant d'ions en sortie de l'extracteur, $I_{\text{mélange}}$ (en termes de courant d'ions collecté en aval de l'extracteur $I_{\text{collection}}$ et sur les autres parois I_{grille}), est examinée. Dans un premier temps, les effets des masses environnantes (notamment des injecteurs d'aérosol) ainsi que du flux de l'aérosol et de la charge d'espace créée par l'aérosol sur le courant $I_{\text{mélange}}$ sont étudiés. Dans un deuxième temps, les effets de

différentes variables (temps de charge, profil de densité d'ions et trajectoire de l'aérosol) contrôlant la charge des aérosols sont illustrés. Un dernier cas illustrant le couplage de ces variables permet de montrer que dans certains cas, la charge d'un aérosol, dans une densité d'ions spatialement hétérogène, n'augmente pas systématiquement avec l'augmentation de densité d'ions initiale.

V.2. Problématique scientifique de la charge dans une densité d'ions hétérogène

La charge d'aérosol dépend au premier ordre de son diamètre d_p et du produit $N_i t$ (cf.§.I.3.7.2). Pour une taille et une densité d'ions homogène donnée, la charge de l'aérosol ne dépend donc que du temps de charge t . Cependant, dans nos conditions de mélange, où la répartition spatiale de la densité d'ions est hétérogène, le produit $N_i t$ dépend du temps de transit mais aussi de la densité d'ions rencontrée par l'aérosol le long de sa trajectoire.

Différents processus sont impliqués dans le transport électro-hydrodynamique des ions et des particules ainsi que dans le mécanisme de charge par diffusion de l'aérosol. Un schéma de ces différents processus et des paramètres qui les contrôlent est donné par la Figure 79.

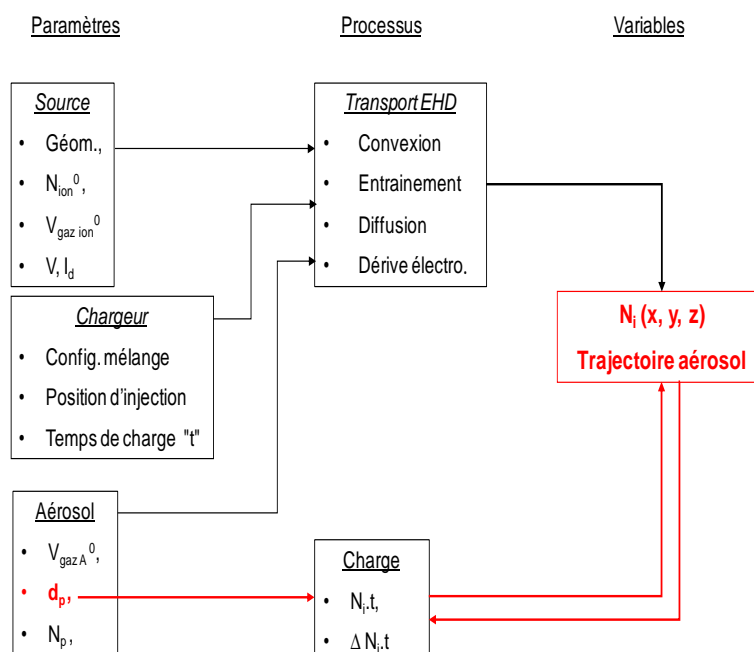
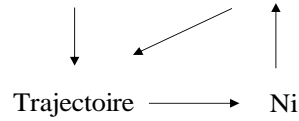


Figure 79: présentation schématique du rétrocontrôle de la charge d'espace et de la charge de l'aérosol

Le transport des ions et des particules est contrôlé par la diffusion, les forces de frottement, la dérive électrostatique et l'inertie. Le profil de densité d'ions dépend de la densité d'ions initiale N_i^0 , des profils de champ électrique et de vitesse du gaz. La trajectoire des ions et des particules est régit par la relation fondamentale de la dynamique:

$$m \cdot \frac{d\vec{v}_p}{dt} = \frac{3 \pi \cdot \eta_g \cdot d_p}{C_c} (\vec{v}_{gaz}(t) - \vec{v}_p(t)) + q_p(t) \cdot \vec{E}$$



Avec : C_c , facteur de Cunningham, η_g : viscosité du gaz, et v_p , v_{gaz} les vitesses de particule et du gaz.

Pour un profil de densité d'ions donné, la trajectoire de la particule définit le produit $N_i.t$ vu par l'aérosol et donc la variation de charge de la particule qui à son tour affecte sa trajectoire.

Le champ électrique dépend du profil de densité de charge d'espace (ions et particules chargées), de la géométrie de la zone de mélange, du champ de Laplace créé par la pointe et de la polarisation des isolants (e.g. PTPE dans le cas des extracteurs de type sandwich).

L'approche retenue, pour évaluer le produit $N_i.t$ moyen rencontré par les particules, est expérimentale. Elle est fondée sur l'utilisation d'aérosols monodispersés comme "sonde" pour évaluer le produit $N_i.t$ à partir du nombre moyen de charge acquis par particule (calculé grâce à la mesure du courant de particules chargées et de la concentration de l'aérosol) et de la loi charge de Fuchs dans le régime de transition. Les produits $N_i.t$ moyens sont évalués selon le courant d'ions entrant dans la zone de mélange, $I_{mélange}$ (ou selon le courant de décharge I_d , lorsque le courant $I_{mélange}$ ne peut être évalué dans le cas des extracteurs métalliques), dans les différentes conditions de mélange.

V.3. Etude préliminaire : mélange ions-aérosol perpendiculaire non axi-symétrique

Ce paragraphe vise à illustrer l'importance du choix des paramètres du mélange ions-aérosol sur la charge acquise par des aérosols injectés dans une densité d'ions spatialement hétérogène. (cf. §.V.2). En effet, la source d'ions développée permet certes de produire des densités d'ions initiales N_i^0 élevées en entrée de la zone de mélange (jusqu'à 10^{10} cm^{-3}), mais cette condition est nécessaire mais pas suffisante pour obtenir des produits $N_i.t$ de l'ordre de quelques 10^6 s.cm^{-3} qui permettent d'atteindre des niveaux de charge compatibles avec la limite de détection et surtout de limiter la charge partielle des particules les plus fines. Dans ce paragraphe, les ions et les particules sont injectés dans deux jets qui forment un angle de 90° , ce mélange est appelé « mélange perpendiculaire ». Cette configuration de mélange présente un plan de symétrie (le plan contenant les axes des injecteurs d'ions et d'aérosol). Les deux principaux aspects étudiés ici avec des particules monodispersées sont :

- l'influence de la position relative des jets sur le produit $N_i.t$ moyen et donc sur la charge des particules, pour une taille d'aérosol fixée,
- et les conséquences de l'asymétrie des profils de densité d'ions et de concentration d'aérosol sur la charge moyenne selon le diamètre des particules et la concentration de l'aérosol.

V.3.1. Produit $N_i.t$ moyen et charge des particules selon la position d'injection

Pour montrer l'importance des conditions de mélange ions-aérosol. L'effet de la position relative des jets d'ions et d'aérosol sur la charge de l'aérosol est présenté. Dans un premier temps, un calcul théorique simplifié permet d'estimer l'évolution du produit $N_i.t$ moyen selon la position relative des jets, cette évolution est ensuite confirmée expérimentalement.

V.3.1.1. Approche théorique simplifiée

Une estimation "grossière" du produit $N_i.t$ moyen vu par les particules dans une configuration perpendiculaire est obtenue par calcul pour différentes positions d'injection de l'aérosol.

Les hypothèses simplificatrices retenues pour ce calcul sont :

- Trajectoire de l'aérosol : les particules sont injectées sur l'axe de symétrie du jet d'ions et restent sur cet axe (cf. Figure 80). En clair, seule l'évolution de la densité d'ions sur l'axe est requise pour évaluer les densités d'ions traversées par les particules. Dans la réalité, l'aérosol est injecté en dehors de la zone centrale à forte densité et pénètre dans des densités d'ions de plus en plus fortes avant de ressortir de cette zone à forte densité.

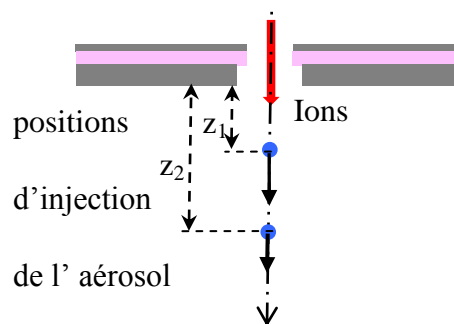


Figure 80: illustration de l'injection de l'aérosol pour l'approche théorique simplifiée

- Hydrodynamique: le régime d'écoulement est supposé établi et laminaire. L'effet de la dilution due au flux d'aérosol n'est pas pris en compte. La vitesse du gaz est constante et égale à $26,5 \text{ m.s}^{-1}$. ($Q_{ions} = 5 \text{ L.min}^{-1}$ et $D = 2 \text{ mm}$)
- Electrostatique : le profil de densité d'ions est contrôlé par les répulsions électrostatiques avec de ions négatifs de mobilité moyenne de $1,8.10^{-4} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}.\text{V}^{-1}$, (cf.§.I.2.3.3)

qui permet d'estimer l'évolution spatiale de la densité d'ions sur l'axe (ou temporelle pour l'approche lagrangienne retenue). La gamme de densités initiales d'ions en post-décharge (de 10^7 à 10^{10} cm^{-3}) est choisie à partir des valeurs mesurées (cf.§. IV.3.3). Le profil de densité d'ions est indépendant de la charge d'espace de l'aérosol chargé, ce qui comme on le verra au §.V.3.2.2, n'est pas vrai.

L'évolution temporelle de la densité d'ions sur l'axe pour 4 densités d'ions initiales allant de 10^7 à 10^{10} cm^{-3} ainsi calculées sont données par la Figure 81a. La Figure 81b représente l'évolution théorique simplifiée du produit $N_i.t$ en fonction de la position d'injection de l'aérosol, obtenue par intégration du profil de densité d'ions Figure 81a sur les 50 ms de trajectoire de la particule.

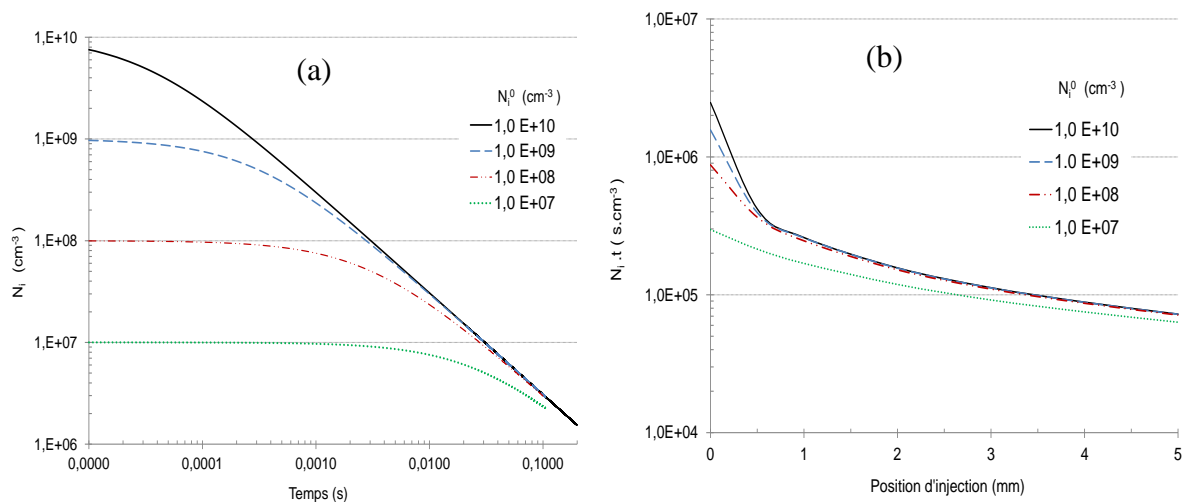


Figure 81: (a) densité d'ions et (b) produit $N_i.t$ pour différentes densités d'ions initiale N_i^0

La Figure 81a montre que quelle que soit la densité d'ions initiale en entrée de la zone de mélange allant de 10^8 - 10^{10} cm^{-3} , la densité au bout de 50 ms est de l'ordre de 10^7 cm^{-3} . Elle peut donc varier de trois ordres de grandeur en 50 ms, la présence de parois à la masse (non simulée ici) peut encore accentuer cette décroissance. Ainsi, l'aérosol doit être injecté au plus près de la sortie pour bénéficier de la forte densité d'ions initiale.

Sur la Figure 81b, le produit $N_i.t$ varie de 2.10^6 s.cm^{-3} pour une position d'injection à $z=0$ à 7.10^4 s.cm^{-3} pour $z=5$ mm (inférieure à la limite basse de $N_i.t$ défini ci-dessus). Avec cette approche simplifiée, une injection à une distance $z < 1$ mm est nécessaire pour atteindre un produit $N_i.t$ requis ($> 10^6$ s.cm^{-3}), ceci quelle que soit la densité d'ions initiale.

L'influence de telles variations du produit $N_i.t$, dues à la position d'injection de l'aérosol, sur le nombre moyen de charge par particule est présentée sur la Figure 82 selon le diamètre des particules. La loi de White est utilisée en première approximation pour le calcul du nombre

moyen de charge par particule dans les conditions normales de pression et température (20°C $P=1,013.10^5$ Pa). L'évaluation du nombre de charge est valide à un ordre de grandeur près sur la gamme de taille 10 nm -1000 nm.

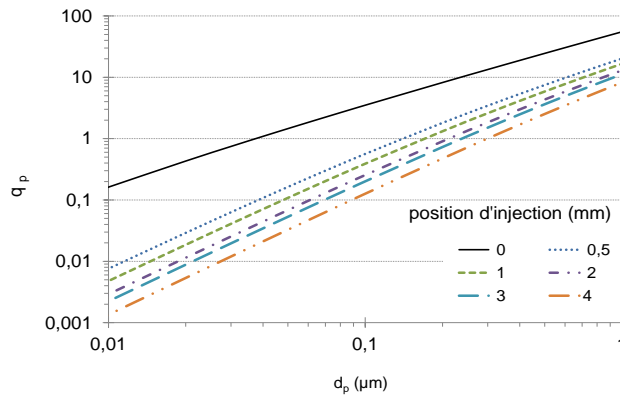


Figure 82: évolution du nombre de charge selon le diamètre pour différents $N_{i,t}$ relatifs à la position d'injection pour $N_i^0 = 10^{10} \text{ cm}^{-3}$

Pour un diamètre de 10 nm, le nombre moyen de charge par particule q_p évolue de 0,2 pour $z= 0$ mm à 0,001 pour une injection à $z= 0,5$ mm, à 0,007 pour $z=4$ mm. Pour un diamètre de 1 µm, q_p passe de 55 pour $z= 0$ mm à 9 charges par particules à 20 charges. Sachant que le courant de particules chargées est proportionnel au niveau de charge, les variations engendrées par la position d'injection sont donc significatives d'autant plus que les particules sont petites. Ces calculs sont comparés aux résultats dans le paragraphe suivant.

V.3.1.2. Confirmation expérimentale

L'influence de la position d'injection de l'aérosol sur le nombre moyen de charge acquis par une particule est mesurée dans une configuration de mélange perpendiculaire non axi-symétrique. L'axe d'injection de l'aérosol est perpendiculaire à celui de l'extracteur d'ions (Figure 83). Le débit d'ions est de $Q_{ions}= 5 \text{ L.min}^{-1}$ et celui d'aérosol de $Q_A= 2 \text{ L.min}^{-1}$. Le temps de charge est ici de 150 ms (diamètre et longueur du chargeur de 20 et 60 mm).

L'injecteur d'aérosol à la masse affecte le profil de densité d'ions dans le chargeur et l'extracteur d'ions électrostatiquement (cf. V.4.1.3.a)

La position de la canule d'injection d'aérosol affecte le profil de densité d'ions. L'effet dominant est lié à la modification des lignes de champ se terminant sur l'injecteur d'aérosol à la masse (cf. Figure 83). Le second effet est lié à la dilution des ions par le flux d'aérosol qui réduit la densité d'ions. Pour étudier l'influence de la position de la canule d'injection d'aérosol, à profil de densité d'ions quasi-constant (seule la dilution joue), une grille à la

masse est positionnée devant l'injecteur d'aérosol pour s'affranchir de la modification des lignes de champ.

La Figure 83 représente le schéma de l'expérience. Quatre positions d'injection sont testées de $z = 2,5$ à $z = 9$ mm.

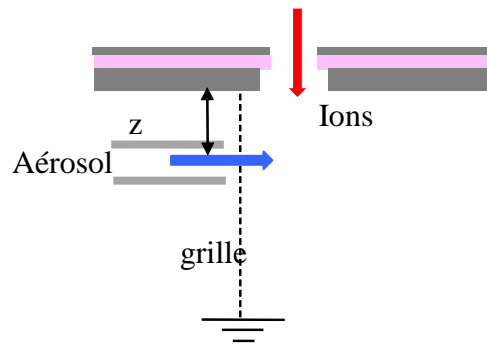


Figure 83: schéma du dispositif expérimental employé pour l'étude de l'effet de la position d'injection sur la charge de l'aérosol.

Les évolutions du nombre moyen de charge par particule ($d_p = 100$ nm) et du produit $N_i \cdot t$ correspondant en fonction de la position d'injection sont données par la Figure 84.

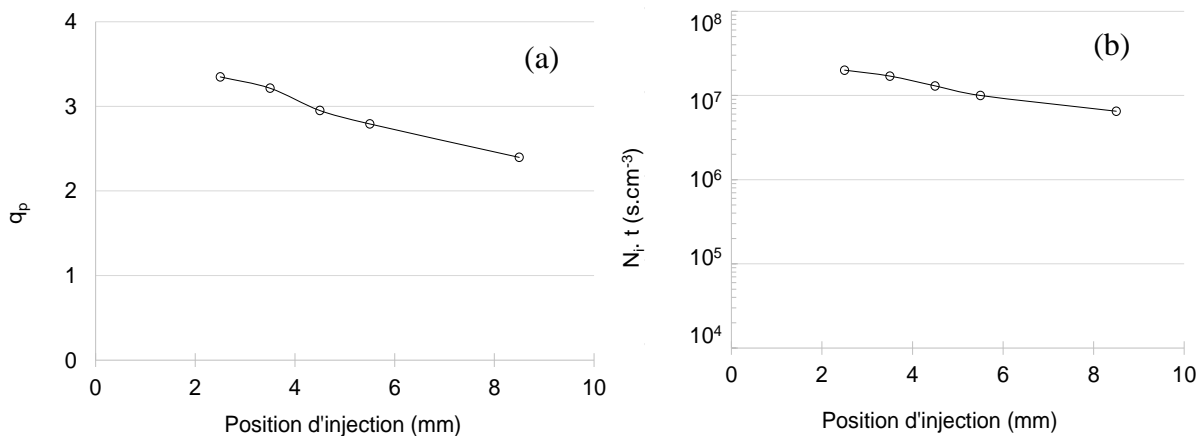


Figure 84: évolution du nombre moyen de charge par particule et du produit $N_i \cdot t$ selon la position d'injection

Le nombre moyen de charge décroît de 3,3 à 2,4 charges par particule lorsque la position de la canule d'injection passe de 2,2 à 9 mm et que l'aérosol est injecté dans une densité d'ions d'autant plus faible que la canule est éloignée de la sortie de l'extracteur d'ions.

V.3.2. Conséquences de la dissymétrie du mélange ions-aérosol

Les évolutions de charge moyenne par particules selon la taille des particules à concentration constante d'aérosol et inversement, à taille constante selon la concentration, permettent de montrer les effets de la non axi-symétrie du mélange ions-aérosol perpendiculaire.

V.3.2.1. Sur la relation charge diamètre

Pour cette étude, la distance inter-électrodes est de 7 mm, le courant d'ions entrant dans la zone de mélange $I_{mélange}$ est fixé à 250 nA (tension appliquée à la pointe -4,6 kV pour un courant de décharge de -8 μ A). Les débits sont fixés à 15 L.min⁻¹ pour les ions et 7 L.min⁻¹ pour les aérosols. L'extracteur des ions est un plan métallique (épaisseur 600 μ m) percé recouvert en aval de polyacétal (200 μ m). Les diamètres des injecteurs d'ions et d'aérosols sont de 2 mm. L'injection des aérosols est placée 4 mm sous la sortie d'ions et décalée de 4 mm, les axes des jets d'ions et d'aérosol se croisent à 90° (cf. Figure 85).

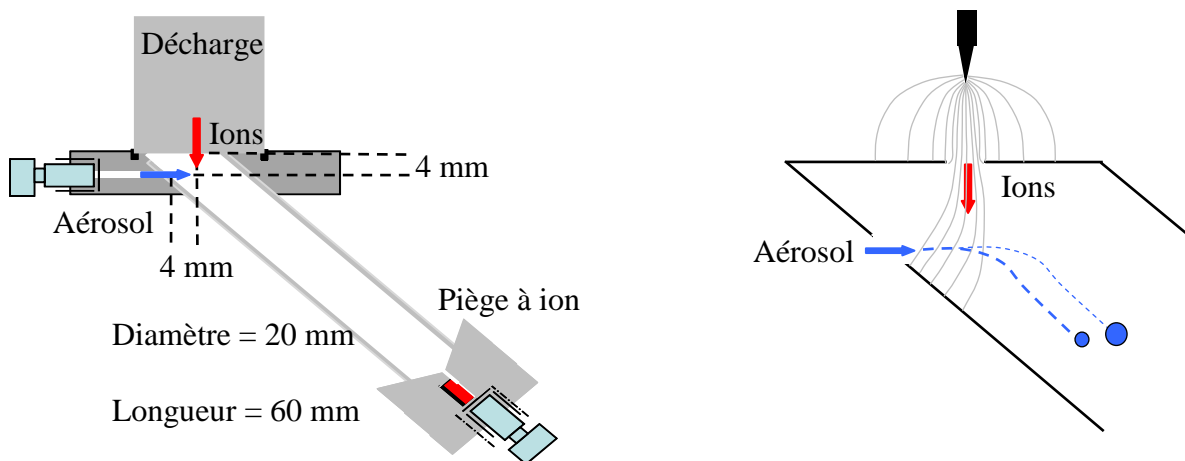


Figure 85: a) géométrie du mélange ion-aérosol perpendiculaire dissymétrique avec b) un zoom du mélange où les lignes de champ de Laplace et les trajectoires de deux particules de tailles différentes

Le diamètre de la zone de charge est de 20 mm avec une sortie à 45° par rapport aux injections d'ions et d'aérosol. Le temps de charge de 50 ms impose dans ces conditions de débit, une longueur de la zone de charge de 60 mm. Enfin, la pression dans la décharge est fixée à 1020 mbar et celle dans la zone de charge à 960 mbar. Dans ces conditions, la densité d'ions initiale N_i^0 , dans l'extracteur est de l'ordre de 3.10^9 cm^{-3} .

La charge moyenne des particules mesurée selon le diamètre est tracée en pointillés, sur la Figure 86 pour des concentrations d'aérosol constantes de $10^4 \text{ cm}^{-3} \pm 20\%$. La courbe théorique en trait plein est calculée avec la loi de Fuchs dans le régime de transition pour un produit $N_i.t$ de 5.10^5 s.cm^{-3} , évalué à partir de la charge moyenne des particules de 100 nm.

Pour les particules de diamètres de 50 à 200 nm, les niveaux de charge mesurés et calculés sont cohérents. Les pertes électrostatiques sont donc négligeables même pour les particules les plus mobiles. Pour les particules de diamètres supérieurs à 200 nm, qui possèdent un temps de relaxation plus grand et suivent plus difficilement le flux de gaz, l'évolution des niveaux de

charge avec le diamètre est très différentes. Les particules rencontrent des produits $N_i.t$ de plus en plus faibles à mesure que leurs tailles augmentent. C'est probablement la modification des trajectoires des particules selon leur taille qui expliquerait ces variations. Cet effet sera détaillé ultérieurement (cf.§. V.5.5)

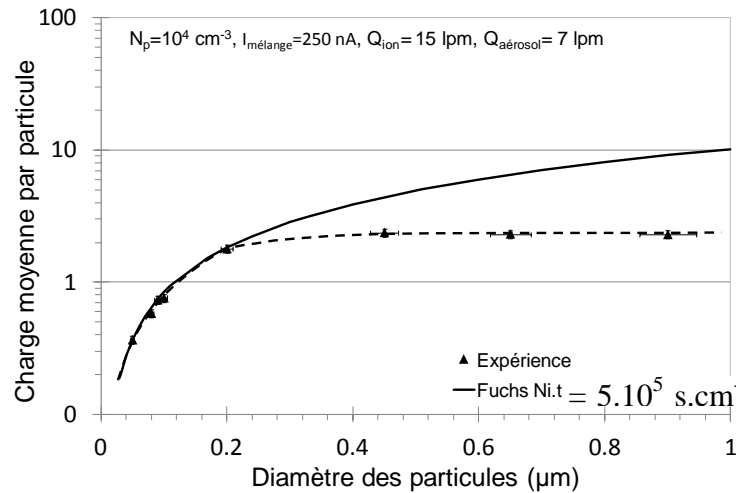


Figure 86: relation charge-diamètre pour un mélange ions-aérosol perpendiculaire dissymétrique à $I_{mélange}$ constant de 250 nA

Il existe un plateau pour les aérosols de diamètres supérieurs à 200 nm. Ce point de fonctionnement est intéressant en termes d'inversion de données. Dans cette gamme de taille, le courant de particules chargées est une image directe de la concentration d'aérosol. Néanmoins cet avantage est contre-balané par le produit $N_i.t$ moyen trop faible ($N_i.t^{évalué} < 5.10^5 \text{ s.cm}^{-3}$) comparé à celui requis ($N_i.t^{requis} > 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$). De plus, l'évolution de la charge moyenne avec la concentration de l'aérosol n'est pas linéaire (cf. § V.3.2.2 ci-dessous).

V.3.2.2. Sur la charge moyenne selon la concentration d'aérosol monodispersé

Le nombre moyen de charge par particule est mesuré selon la concentration d'aérosol de 100 nm, allant de 2.10^3 à 5.10^4 cm^{-3} dans le chargeur décrit ci-dessus. Dans cette configuration de mélange, la charge de l'aérosol dépend de la concentration de l'aérosol (cf. Figure 87).

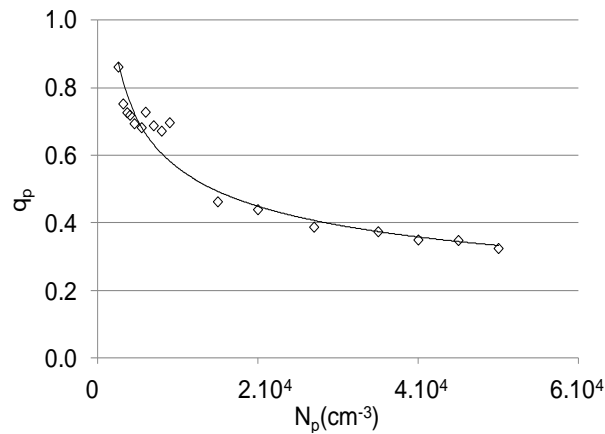


Figure 87: nombre moyen de charge par particule de 100 nm selon la concentration de l'aérosol

Une augmentation de concentration d'aérosol de 2.10^3 à 5.10^4 cm^{-3} entraîne une diminution de plus de 50% du nombre moyen de charge par particule. Une hypothèse permet d'expliquer cette décroissance : la perte d'ions aux parois par répulsions électrostatiques induites par la charge d'espace d'aérosol chargé ($E_p \propto q_p \cdot N_p$). En effet, la charge d'espace d'aérosol chargé augmente avec la concentration d'aérosol malgré une charge moyenne décroissante avec la concentration. Les ions sont alors "repoussés" de part et d'autre du plan de symétrie des axes d'injections des ions et de l'aérosol. Cette hypothèse n'est pas démontrée, mais, dans les configurations axisymétriques de mélange ions-aérosol, la linéarité I_p-N_p est assurée.

La perte de linéarité du courant de particules chargées avec la concentration d'aérosol rend ce système inapproprié pour la mesure de concentration d'aérosol (cf.§.II.2.3)

A partir de ces résultats, nous pouvons choisir les configurations de mélange d'étude assurant une symétrie axiale des profils de densité d'ions et de concentration d'aérosol.

V.4. Choix des configurations de mélange axi-symétriques et courant d'ions

V.4.1.1. Configurations de mélange testées

Afin d'injecter l'aérosol dans de fortes densités d'ions avec un profil de densité d'ions axisymétrique, deux autres configurations de mélanges ions-aérosol concentrique et face-à-face sont étudiées.

Le même extracteur (sandwich métal-PTPE-métal) que ceux de l'étude de l'extraction d'ions sont utilisés. Les débits d'ions et d'aérosols sont de $Q_{ions} = Q_A = 30 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$.

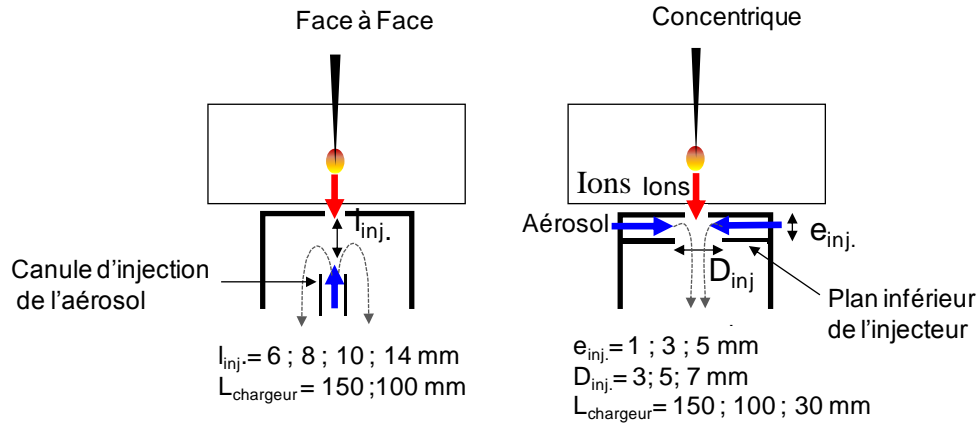


Figure 88: schéma des deux configurations de mélange ions-aérosols étudiées

Le mélange face-à-face permet d'injecter l'aérosol dans une densité d'ions qui dépend de la position de la canule. D'où l'intérêt d'étudier l'effet de la position d'injection l_{inj} sur la charge de l'aérosol. Pour limiter les pertes de charge et les fluctuations de pression (mesurées au manomètre) induites par le mélange des deux jets d'ions et d'aérosol dans le système face-à-face, le diamètre de la canule d'injection est de $D_{canule} = 4$ mm (cf. Figure 88). En effet, pour un diamètre de canule de 2 mm, une fluctuation de plus de 25 mbar est enregistrée contre 2 à 15 mbar pour $l_{inj}=6$ à 14 mm avec $D_{canule}=4$ mm. De telles fluctuations engendrent des variations du débit d'aérosol prélevé et une erreur sur la concentration d'aérosol neutre injecté dans le chargeur. Seules les positions $l_{inj}=8, 10$ et 14 mm, pour un diamètre de canule de $D_{inj}=4$ mm sont retenues pour lesquelles les fluctuations de pression sont inférieures à 15 mbar.

Dans la configuration de mélange concentrique, les ions traversent le flux d'aérosol et servent donc en partie à charger l'aérosol avant d'être collectés sous le plan en aval de l'extracteur $I_{collection}$. En outre, pour limiter les pertes d'ions aux parois, bien que négligeable, il convient de mentionner que plus la vitesse initiale d'aérosol est grande, plus le confinement des ions est efficace. Cette vitesse initiale d'aérosol est déterminée par la section de sortie de l'injecteur (à débit constant = $30 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$), i.e. par le diamètre intérieur D_{inj} et la distance entre le plan en aval de l'extracteur et le plan inférieur de l'injecteur (e_{inj} , cf. Figure 88).

Plusieurs géométries ont alors été étudiées $e_{inj}= 1, 3$ et 5 mm pour $D_{inj}= 3, 5$ et 7 mm. De même que pour la configuration face-à-face, l'écart $\Delta N_{i,t}$ serait d'autant plus élevé que e_{inj} et/ou D_{canule} sont grands.

La seule surface isolante dans le chargeur est la partie annulaire du plan de PTFE dans l'extracteur non recouverte par le plan métallique en aval pour mesurer le courant $I_{collection}$

(cf.§.III.6.3). L'enceinte et l'injecteur entièrement métalliques évitent les variations de charge mesurée qui résultent de l'évolution du champ surfacique créé par la polarisation des surfaces isolantes en présence d'aérosol à humidité variable. Le diamètre de la zone de mélange est de $D_{chargeur} = 20$ mm. Sachant que les débits d'ions et d'aérosol sont fixés ($Q_{ions} = Q_A = 30 \text{ L.min}^{-1}$ cf. §.V.4.1.2), le temps de transit moyen de l'aérosol dans le chargeur dépend de son volume.

Rappelons que l'approche retenue pour évaluer le produit $N_i.t$ moyen "vu" par les particules est basée sur l'utilisation de l'aérosol monodispersé comme "sonde" pour évaluer le produit $N_i.t$ à partir du nombre moyen de charge acquis par particule, selon la densité d'ions initiale en entrée du chargeur N_i^0 (qui est proportionnelle au courant $I_{mélange}$ pour une géométrie de l'extracteur des ions et un débit de gaz soufflant les ions constants).

Dans une première partie, les processus qui contrôlent la distribution des ions en sortie d'extracteur sont étudiés. Les effets de l'injection d'aérosol (position des injecteurs, vitesse de gaz et charge d'espace d'aérosol chargé) sont ensuite examinés.

V.4.1.2. Répartition du courant $I_{mélange}$ sans injecteur d'aérosol

L'étude de la répartition des ions en sortie de l'extracteur dans la zone post-décharge est décrite dans le chapitre IV. Les masses, dans ce volume post-décharge (parois et grille de mesure), sont positionnées à 3 cm de façon à limiter leur influence sur l'extraction d'ions et la répartition du courant $I_{mélange}$ (cf. §.III.6.3).

a. Compétition EHD

Comme pour la zone de décharge et l'extracteur, le transport d'ions et donc la redistribution du courant d'ions $I_{mélange}$ (en $I_{collection}$ et I_{grille}), est contrôlée par une compétition électrohydrodynamique. Pour rendre compte de cette compétition EHD, un raisonnement similaire à celui décrit plus haut (cf.§. IV.3.3.2.d) qui s'appuie sur l'analogie faite avec formalisme de Whitby qui donne l'expansion d'un nuage d'ions unipolaires sous l'effet des répulsions électrostatiques est tenu.

A géométrie du chargeur constante, le rapport $t_{transit}/t_{dérive}$ est proportionnel au rapport des vitesses $V_{radiale}/V_{axiale}$ ($= \mu_{ion}.E/V_{gaz}$, avec V_{gaz} la vitesse de gaz moyenne dans le jet d'ions sortant de l'extracteur. Avec les mêmes hypothèses (cf.§.IV.3.3.2.d), ce rapport est lui-même proportionnel à N_i^0/V_{gaz} . Le rapport $I_{grille}/I_{mélange}$ pour des débits allant de 5 à 30 L.min^{-1} est représenté sur la Figure 89

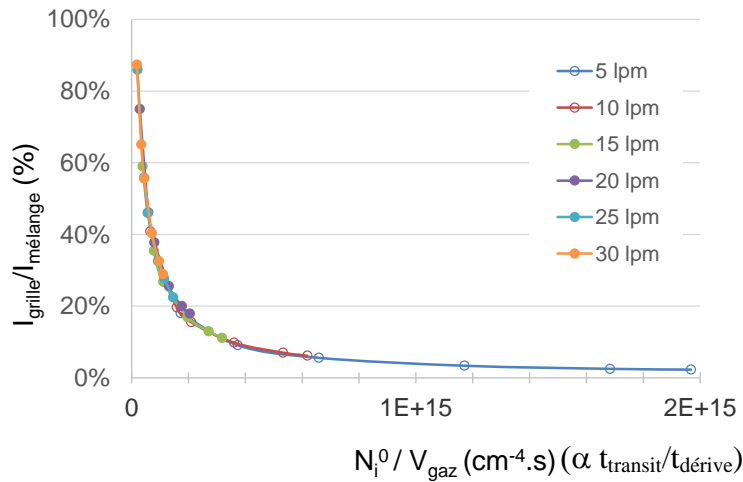


Figure 89: redistribution du courant en sortie de l'extracteur

La tendance du rapport des courants $I_{grille}/I_{mélange}$ est similaire à celle obtenue pour l'efficacité d'extraction. Pour une vitesse de gaz élevée ($V_{gaz} > 100 \text{ m.s}^{-1}$ pour $Q_{ions}=30 \text{ L.min}^{-1}$ et $D=2 \text{ mm}$) et une densité d'ions initiale inférieure à 10^9 cm^{-3} , la convection domine les forces électrostatiques et la quasi-totalité du courant $I_{mélange}$ est collectée sur la grille. Dans le cas inverse, lorsque la densité d'ions est élevée ($> 10^{10} \text{ cm}^{-3}$) et la vitesse du gaz faible ($< 30 \text{ m.s}^{-1}$), la quasi-totalité des ions est donc collectée sur le plan de masse en aval de l'extracteur.

b. Choix du diamètre de l'extracteur et des conditions d'extraction

En sortie de l'extracteur, nous venons de démontrer que la répartition des ions dépend de la vitesse du gaz (pour un débit de la densité d'ions et constant du diamètre de l'extracteur) et de la densité d'ions. L'évolution du courant I_{grille} est tracée en fonction du courant I_d est donnée sur la Figure 90 pour 3 diamètres d'extracteur à 5 L.min^{-1} .

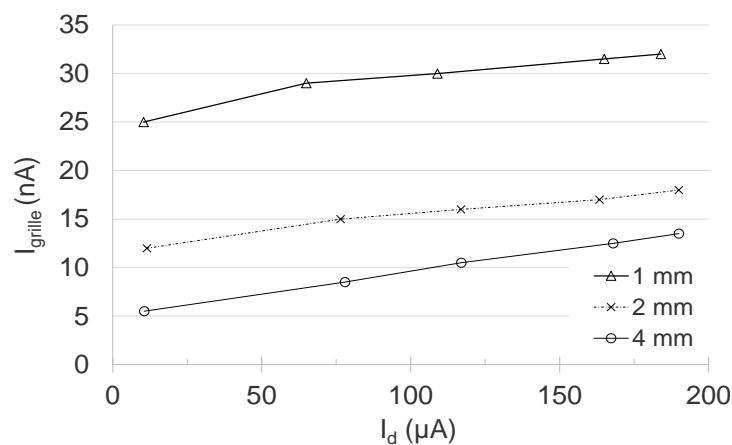


Figure 90 : courant I_{grille} en fonction du courant I_d pour différents diamètres de l'extracteur ($D=1, 2$ et 4 mm ; $Q_{ions}=5 \text{ L.min}^{-1}$).

A débit et courant de décharge constants, le courant d'ions « disponible pour la charge des aérosols » dans le chargeur I_{grille} diminue avec le diamètre en raison d'une vitesse de gaz plus faible malgré un courant d'ions total $I_{mélange}$ plus grand.

Si un diamètre de 1 mm est favorable en terme de courant d'ions, la perte de charge dans l'extracteur dépasse 700 mbar à 30 L.min, le courant I_{grille} maximum est mesuré pour un diamètre d'extracteur $D=2$ mm à 30 L.min⁻¹ (non représenté). Ce sont les conditions retenues pour l'étude de l'influence du mélange ion-aérosol sur la charge des particules.

Pour la suite de l'étude, le diamètre de l'extracteur est fixé à 2 mm et le débit d'ions à 30 L.min⁻¹ pour atteindre les courants d'ions maximum en post-décharge ($I_{mélange}$ cf. §V.4.1.3) et limiter les pertes d'ions sur le plan métallique en aval de l'extracteur ($I_{collection}$ minimum i.e. $I_{grille}/I_{mélange}$).

Nous avons optimisé l'extracteur pour pouvoir atteindre des densités d'ions en entrée du chargeur N_i° maximales de l'ordre de 10¹⁰ cm⁻³. Toutefois, la Figure 89 prouve que, dans ce cas, la majorité des ions est collectée sur le plan en aval de l'extracteur. Il s'agit maintenant d'optimiser la densité d'ions sur la trajectoire des particules. Les études paramétriques sont donc menées en fonction du courant d'ions qui rentre dans le chargeur $I_{mélange}$.

V.4.1.3. Modification du courant d'ions entrant dans le chargeur par injection d'aérosol

Afin de comparer les configurations de mélange à courant $I_{mélange}$ constant, il est nécessaire de quantifier les effets, sur ce courant, de l'injecteur d'aérosol, du flux de gaz vecteur de des particules et de la charge d'espace de l'aérosol chargé.

a. Effet de l'injecteur d'aérosol à la masse

Le courant $I_{mélange}$ est mesuré dans les configurations concentrique et face-à-face pour différentes positions d'injecteur (la canule pour la configuration face-à-face et le plan inférieur de l'injecteur pour le mélange concentrique) selon le courant de décharge I_d (cf. Figure 91).

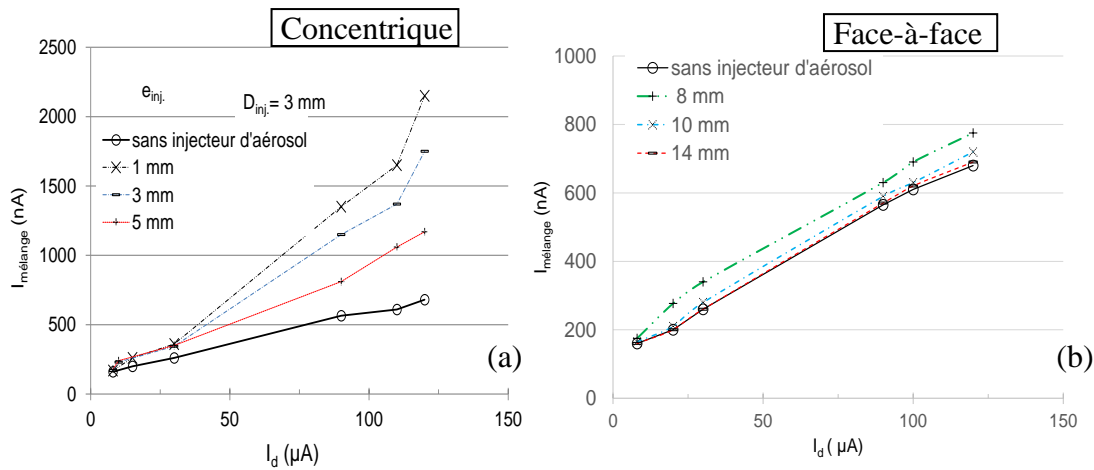


Figure 91 : effet de la position d'injecteur d'aérosol sur $I_{mélange}$ en configuration de mélange ion-aérosols (a) concentrique et (b) face-à-face, selon le courant de décharge

Pour les deux configurations, le courants $I_{mélange}$ est plus fort en présence d'injecteur et d'autant plus que l'injecteur d'aérosol est "proche" de la sortie de l'extracteur d'ions.

Pour le mélange face-à-face, le courant $I_{mélange}$ augmente de 15% au maximum pour une position d'injection $l_{inj} = 8 \text{ mm}$.

En configuration concentrique, le courant $I_{mélange}$ est jusqu'à deux fois plus grand que celle obtenue en face-à-face. Ce résultat n'est pas surprenant aux vues de la plus grande surface de l'injecteur et de la plus courte distance qui le sépare de l'injection d'ions. La rupture de pente observée pour les courants de décharge I_d supérieur à $100 \mu\text{A}$ est probablement due à l'effet du champ de Laplace de la pointe sur l'extraction d'ions (cf. IV.3.3.2.c).

Les effets du débit de gaz et de la charge d'espace d'aérosol sont négligeables sur l'extraction d'ions (inférieurs à 5 %) même pour les positions d'injection les plus proches et pour les concentrations d'aérosols les plus grandes (10^5 cm^{-3}).

b. Répartition du courant dans le chargeur selon la configuration de mélange:

Il est important de noter, que ces trois effets (effet des masses, du débit de gaz et de l'aérosol chargé) modifient le profil de densité d'ions dans la zone de mélange. Le courant $I_{mélange}$ se répartit sur les différentes masses dans le chargeur selon la configuration de mélange (cf. Figure 92).

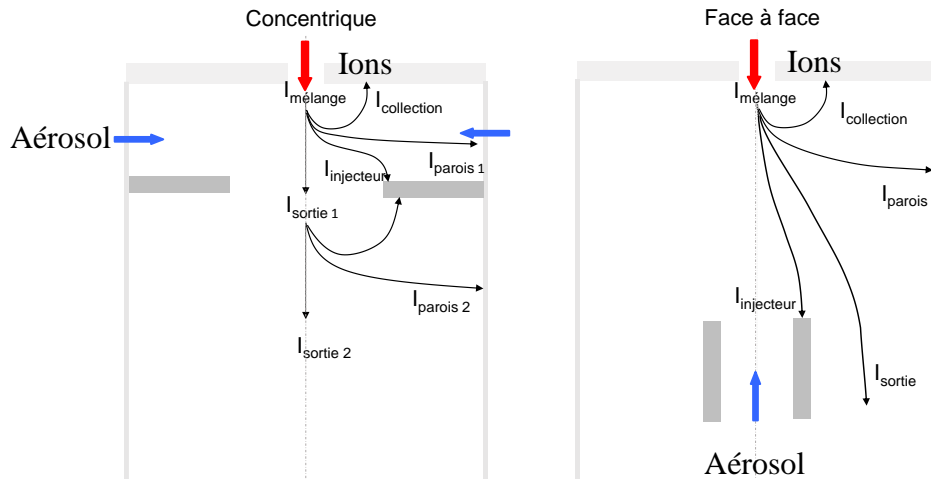


Figure 92 : répartition du courant en zone de mélange (a) concentrique (b) face-à-face

Densité d'ions en sortie du chargeur : quelle que soit la configuration de mélange étudiée, le courant en sortie de chargeur appelé I_{sortie} (après un temps de séjour $t \sim 50$ ms) est de l'ordre du nA ce qui correspond à une densité d'ions de l'ordre de $6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$. Ceci confirme la forte hétérogénéité de la densité d'ions dans la zone de mélange.

Ces mesures des courants d'ions en post-décharge ont permis de montrer que la forme et la position des injecteurs d'aérosol sont les paramètres les plus critiques de contrôle des flux d'ions entrant dans le chargeur. Le débit de gaz utilisé pour extraire les ions est maintenant fixé à $30 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ afin d'atteindre un courant d'ions maximal (de 180 nA à 2 μA) et surtout de limiter la recollection immédiate des ions en aval de l'extracteur. Dans la mesure où le courant entrant dans la zone de mélange est affecté par la position de l'injecteur, la charge moyenne est comparée à $I_{\text{mélange}}$ constant bien que les expériences aient été menées à courant de décharge constant pour maîtriser le régime de fonctionnement de la décharge et comparer les mesures de charge par particule à champ de Laplace constant.

V.5. Charge moyenne par particule dans les mélanges axisymétriques

Rappelons que la charge de l'aérosol dans une densité d'ions hétérogène dépend, du temps de charge, du profil de densité d'ions et de la trajectoire de l'aérosol dans ce profil de densité d'ions (cf. §.V.2). Nous allons donc montrer, dans cette partie, que pour compenser le temps de charge inférieur à 50 ms, il est nécessaire d'optimiser la densité d'ions rencontrée par la particule le long de sa trajectoire. Cette densité d'ions dépend certes de la densité d'ions initiale N_i^0 mais surtout de la répartition des ions dans le chargeur.

Différents paramètres de régulation (le courant I_d , la géométrie du mélange, les débits de gaz pour les ions $Q_{\text{gaz ions}}$ et les aérosols Q_A fixés tous les deux à $30 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ et le champ de

Laplace) affectent les variables (le courant $I_{mélange}$, le champ électrostatique et le profil de vitesse du gaz et le temps de transit de l'aérosol) qui contrôlent le profil de densité d'ions, la trajectoire de l'aérosol et donc la charge de l'aérosol (cf. §V.2). En toute rigueur, modifier l'un de ces paramètres affecte plusieurs variables à la fois. Néanmoins, dans certaines conditions, il est possible d'illustrer des effets où, au premier ordre, une seule variable est affectée.

L'objectif est de quantifier les effets respectifs de ces variables pour optimiser la charge de l'aérosol et ainsi choisir le chargeur optimal. Après avoir défini les conditions expérimentales retenues (pression, taille des particules, courant $I_{mélange}$), nous montrerons l'effet du temps de charge, du profil de densité d'ions et de la trajectoire des aérosols sur la charge moyenne par particule. Un dernier cas pour lequel plusieurs de ces variables sont couplées est également illustré en modifiant la position d'injection de l'aérosol.

V.5.1. Conditions d'étude et loi théorique de référence

Par la suite, sauf lorsque cela est précisé, le diamètre de l'aérosol monodispersé de référence est de 460 nm. Cette taille a été retenue car les niveaux de charge sont élevés de 15 à 21 et permettent de mettre en évidence (i) les modifications du produit $N_i t$ vu par les particules (ii) l'effet de la charge d'espace aérosol (cf. §.V.3.2.2). La charge moyenne par particule est mesurée dans les deux configurations de mélange ions-aérosol concentrique et face-à-face avec le dispositif décrit au §.III.5.2.

L'estimation des produits $N_i t$ est réalisée avec la loi de Fuchs dans le régime de transition (cf. §. I.3.7.2.c). Il faut rappeler que cette loi s'applique pour un nombre de Knudsen ionique proche de 1 ($Kn_i = 2 \cdot \lambda_i / d_p \sim 1$), ce qui correspond dans ce chapitre pour une pression constante de 880 mbar, à un diamètre de particule de 40 nm. Un facteur 10 est généralement toléré, c'est-à-dire que pour les particules de diamètres supérieures à 400 nm, la loi de Fuchs dans le régime continu ($Kn_i \gg 1$) est plus proche des mesures [BIS-04]. Toutefois les écarts entre ces deux lois restent faibles (de l'ordre de 10 % entre 100 et 1000 nm). Pour le même $N_i t$, la loi de Fuchs dans le régime continu donne des niveaux de charge supérieurs à ceux calculés dans le régime de transition (en deçà de 1 μm). Aux vues de nos résultats, et pour simplifier la présentation, nous ne représenterons et discuterons que de la loi de Fuchs dans le régime de transition.

V.5.2. Phénoménologie : charge moyenne selon $I_{mélange}$

En densité d'ions homogène, la charge de l'aérosol augmente avec ce courant $I_{mélange}$. Nous allons voir que ce n'est pas toujours le cas dans des densités d'ions hétérogènes.

Le nombre moyen de charge q_p en fonction du courant $I_{mélange}$ est donnée pour les deux configurations de mélange (face-à-face $l_{inj.}=14$ mm et concentrique avec $e_{inj.}=D_{inj.}=3$ mm avec extracteur « sandwich » de $D=2$ mm) sur la Figure 93. Le courant $I_{mélange}$ est contrôlé par la tension de décharge appliquée à la pointe.

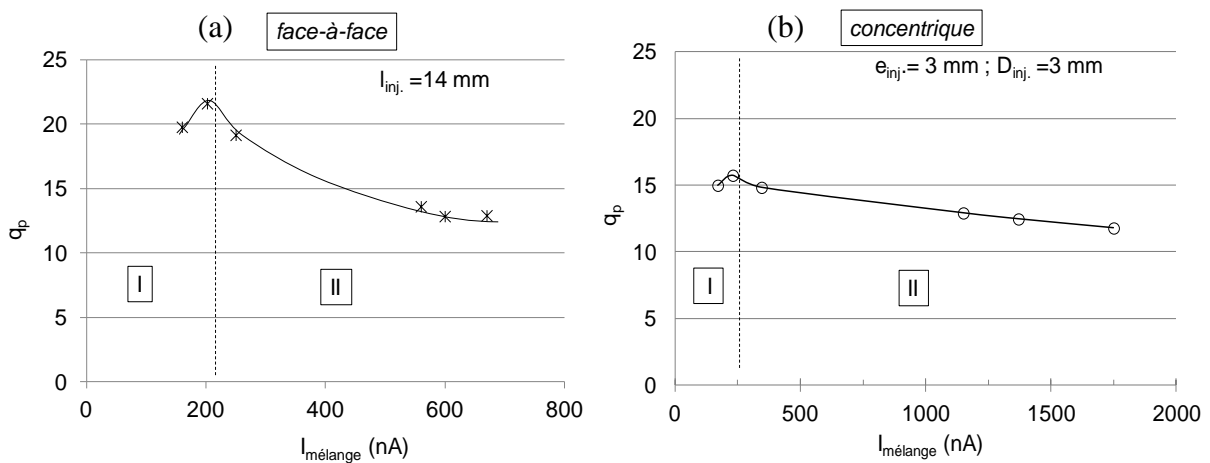


Figure 93 : nombre moyen de charges par particule ($d_p=460$ nm) selon le courant $I_{mélange}$ dans les deux configurations (a) concentrique $e_{inj.}=D_{inj.}=3$ mm, (b) face-à-face $l_{inj.}=14$ mm

Pour les deux configurations de mélange, le nombre moyen de charge par particule augmente avec le courant jusqu'à 200 nA (phase I), puis décroît pour des courants plus forts (phase II).

Hypothèses interprétatives: la décroissance en fonction du courant $I_{mélange}$ dans la phase II est à première vue inattendue. En effet, une augmentation du courant $I_{mélange}$ se traduit à priori par une augmentation de la densité d'ions initiale N_i^0 et probablement de la densité d'ions en tout point du chargeur et donc du produit $N_i \cdot t$ et du nombre moyen de charge par particule.

Pour expliquer cette décroissance de la charge trois hypothèses ont été émises. Elles sont liées au champ de Laplace de la pointe de décharge $E^{L-1}(3)$, au champ de surface du PTPE dans l'extracteur $E^{\sigma-2}(3)$ et à la trajectoire de l'aérosol.

La première concerne l'effet du champ de Laplace qui augmente avec la tension i.e. l'effet de lignes de champ de la pointe de décharge jusqu'au plan en aval de l'extracteur et jusqu'à l'injecteur aérosol, qui traversent l'extracteur et augmentent la fraction d'ions collectés en aval de l'extracteur avec la tension. Ces pertes accrues pourraient conduire à des densités d'ions plus faibles dans la majorité du volume du chargeur. Cette première hypothèse n'est

pas suffisante. En effet, pour l'extracteur métallique, la charge croît avec le courant $I_{mélange}$ dans les mêmes conditions de champ de Laplace pour les deux extracteurs (cf. §V.5.7).

La deuxième hypothèse (cf. §V.5.4.2) concerne l'effet du champ surfacique créé par polarisation du PTPE sur la répartition des ions dans le chargeur. Ce champ augmente avec $I_{mélange}$, ainsi que les pertes sur le plan de masse en aval de l'extracteur (cf. §V.4.1.2) et sur les injecteurs d'aérosol. De plus, comme le champ total et donc la vitesse de dérive électrique des ions augmentent, la densité d'ions décroît dans la majeure partie du chargeur.

La troisième hypothèse (cf. §V.5.5) concerne le rétrocontrôle de la trajectoire des particules. Cette hypothèse suppose que les densités d'ions en tout point du chargeur augmentent avec le courant $I_{mélange}$. Les particules se chargent en un temps plus court et sont alors repoussées des fortes densités d'ions vers des densités d'ions plus faibles.

Les deux dernières hypothèses sont détaillées dans les paragraphes correspondants aux variables qui contrôlent la charge (temps de charge, profil de densité d'ions et trajectoire)

V.5.3. Temps de charge

Le but de ce paragraphe est de modifier le temps de charge dans les chargeurs développés afin d'évaluer la densité d'ions en sortie du chargeur, avant le piège à ions. Le diamètre du chargeur et le débit total d'ions et d'aérosol étant fixes ($D_{chargeur} = 20$ mm et $Q_{ions} + Q_{aérosol} = 60$ L.min⁻¹), le temps de charge varie avec la longueur du chargeur ($t = Volume / Q_{total}$).

Le nombre moyen de charge par particule q_p selon le courant $I_{mélange}$ pour le mélange face-à-face ($l_{inj.} = 8$ mm) est donné sur la Figure 94 pour des temps de charge de 30 et 45 ms.

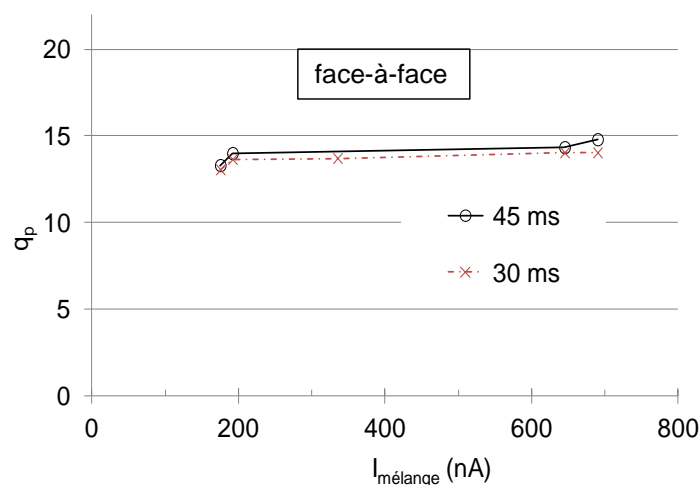


Figure 94: nombre moyen de charge par particule pour deux temps de charge en configuration face-à-face ($l_{inj.} = 8$ mm)

Le nombre moyen de charge par particule augmente de moins de 5% (dans l'erreur de mesure) pour un temps de charge de 30 à 45 ms. Les 15 dernières millisecondes de charge sont donc quasi-inutiles pour la charge d'un aérosol de 460 nm.

La même observation est faite en configuration concentrique avec toutefois une influence plus marquée de la réduction du temps de charge. La charge par particule augmente d'un facteur 1,1 pour $I_{mélange}=200$ nA jusqu'à un facteur 1,6 pour $I_{mélange}=2000$ nA (non présenté).

Pour expliquer ce résultat, l'évolution qualitative de la densité d'ions traversée par une particule le long de sa trajectoire dans le chargeur est représentée sur la Figure 95(a). L'évolution du nombre moyen de charge selon le produit $N_i.t$ est donnée par la Figure 95 (b).

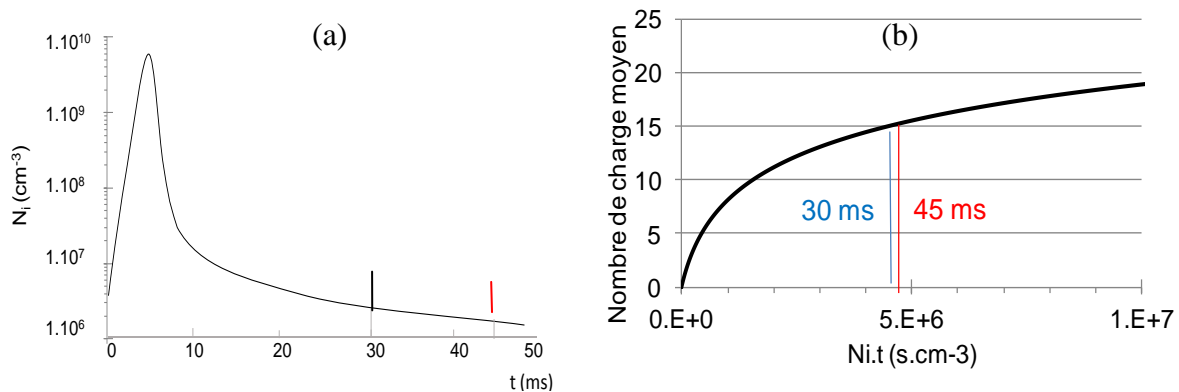


Figure 95 : influence du temps de charge sur le nombre moyen de charge par particule q_p

Dans le chargeur, une particule traverse des densités d'ions croissantes (cf. Figure 95a), puis transite dans des densités décroissantes jusqu'en sortie de chargeur. Deux points expliquent le faible écart de niveau de charge mesuré pour des temps de charge de 30 et 45 ms. D'une part, la forte hétérogénéité de la densité d'ions qui décroît de plus de 3 ordres de grandeurs entre l'entrée et la sortie du chargeur. D'autre part, le fait que l'évolution de la charge en fonction du produit $N_i.t$ soit logarithmique. Le produit $N_i.t$ correspond à l'aire sous la courbe de la Figure 95a, le fait d'augmenter le temps dans des densités d'ions faibles a un effet négligeable sur le produit $N_i.t$ et encore moins la charge puisque la particule est déjà chargée.

La densité d'ions moyenne dans le volume du chargeur correspondant aux 15 dernières ms, peut être estimée à partir de l'évolution du produit $N_i.t$ (de l'ordre de 10^5 s.cm⁻³ lorsque le niveau de charge passe de 13,7 en 30 ms- à 14,1 charge en 45 ms pour $I_{mélange}=350$ nA). La densité moyenne est de l'ordre de 6.10^6 cm⁻³ ($10^5/0.015$). Cet ordre de grandeur est cohérent avec celui évalué à partir du courant d'ions en sortie du chargeur (cf. V.4.1.3).

La charge des particules a donc lieu, essentiellement, dans les premières ms (voire la première dizaine de ms), là où la densité d'ions est de l'ordre de 10^9 à 10^8 cm^{-3} . Ce point est intéressant pour l'application, car il est ainsi possible de réduire le temps de charge au profit de la séparation millimétrique.

V.5.4. Profil de densité d'ions

L'objectif ici est d'illustrer l'influence du profil de densité d'ions sur le nombre moyen de charge par particule. En toute rigueur, modifier le profil de densité d'ions conduit à modifier la trajectoire de l'aérosol en raison de l'influence de la dynamique de charge (comme démontré au §V.5.5). Néanmoins, dans un premier temps, la trajectoire de l'aérosol est supposée constante pour illustrer l'effet du confinement électrostatique et détailler la seconde hypothèse sur le champ surfacique lié à la polarisation du PTPE (cf. §V.5.2).

V.5.4.1. Contrôlé par le champ de Laplace dans le chargeur

La distribution des ions dans le chargeur peut être contrôlée par un champ de Laplace créé par une électrode polarisée. Cette électrode est l'anode (+) centrale du piège à ions, qui attire les ions négatifs et limite les pertes sur les parois du chargeur. Par la suite, cet effet est appelé confinement électrostatique. Il faut noter que la vitesse des ions est plus grande en présence du champ, ce qui peut réduire la densité d'ions à flux d'ions constant ($j_{ion} = N_{ion} \cdot v_{ion}$).

L'étude des mélanges concentriques est conduite avec un grillage métallique connectée à la masse (dénommé écran par la suite) pour s'affranchir du champ électrique créé par le piège à ions. Il est à noter que dans le mélange face-à-face, la canule d'injection des aérosols joue ce rôle écran. En effet, la charge mesurée avec ou sans écran sur le piège à ions est constante.

Le champ de Laplace dépend de la tension d'anode et de la position du piège à ions par rapport à l'injection d'ions. Par la suite, la tension appliquée est de 40 V, le champ de Laplace est alors contrôlé par la longueur du chargeur, ce qui modifie aussi le temps de charge.

La Figure 96(a) représente le nombre de charge par particule selon le courant $I_{mélange}$ mesuré avec et sans écran (sans/avec confinement électrostatique) pour un temps de charge de 30 ms dans le chargeur concentrique. La Figure 96(b) illustre l'effet de la position du piège à ions (avec modification du temps de charge). Le rapport du nombre moyen de charge mesuré avec confinement électrostatique (sans écran) par le nombre moyen de charge mesuré sans confinement électrostatique (avec l'écran) est représenté sur la Figure 96 (b) pour des temps de charge de 10, 30 et 45 ms (longueurs respectives du chargeur 3, 9 et 13,5 cm).

Sur la Figure 96 (a), à courant $I_{mélange}$ constant, le nombre moyen de charge par particule est plus élevé avec confinement électrostatique que sans. L'effet du confinement sur la charge des particules est d'autant plus important que le courant $I_{mélange}$ est élevé. Pour un courant $I_{mélange} < 250$ nA, le confinement électrostatique affecte de moins de 10% le nombre moyen de charge. Pour la phase II ($I_{mélange} > 250$ nA) l'écart dépasse 40%.

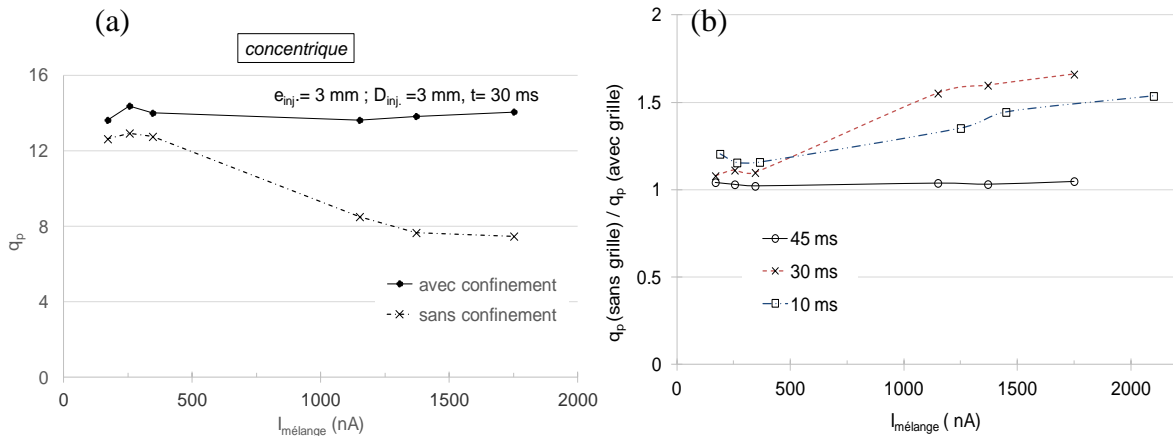


Figure 96: (a) charges moyennes mesurées avec et sans écran pour trois positions du piège à ion (3, 9, 13,5 mm) et (b) rapport des charges moyennes mesurées avec et sans écran sur le piège à ion

Sur la Figure 96 (b), pour un temps de charge de 45 ms, l'effet du confinement est négligeable, le rapport du nombre moyen de charge mesuré avec et sans confinement est proche de 1. A l'inverse en rapprochant le piège à ions de l'injection des ions (10 et 30 ms), le champ de Laplace est plus intense et le confinement électrostatique plus efficace.

Il faut noter que les niveaux de charge mesurés pour un temps de charge de 10 ms, avec confinement électrostatique, sont inférieurs à ceux mesurés pour 30 ms sans confinement (non représenté). Ce résultat s'explique par le fait que le confinement électrostatique ne permet pas de compenser la réduction du produit $N_i \cdot t$ entre 30 et 10 ms.

V.5.4.2. Champ surfacique créé par le PTPE : présentation de l'hypothèse n°2

Il s'agit ici d'expliquer pourquoi le champ surfacique créé par la polarisation du PTPE pourrait rendre compte de la décroissance du niveau de charge avec l'augmentation du courant $I_{mélange}$ dans la phase II (cf. Figure 93). Tout comme le champ de Laplace du piège à ions (cf. § V.5.4.1), le champ de surface du PTPE affecte le profil de densité d'ions.

Toutes choses étant égales par ailleurs, le champ surfacique créé par le PTPE augmente avec le courant $I_{mélange}$. En effet, la densité d'ions dans l'extracteur augmente avec $I_{mélange}$ ce qui augmente les pertes d'ions dans l'extracteur et donc le nombre d'ions à la surface du PTPE

(cf. §.IV.3.3.1.a). Le raisonnement suivant est basé sur l'hypothèse (non démontrée) que l'augmentation de $I_{mélange}$ (dans la phase II) se traduit par une réduction de la densité d'ions dans la majeure partie du volume du chargeur en raison de l'augmentation des pertes d'ions sur le plan due au champ surfacique créé par le PTPE.

Un schéma descriptif de la charge d'une particule dans deux profils d'ions correspondant à deux courants $I_{mélange 1}$ et $I_{mélange 2}$ dans la phase II ($I_{mélange 2} > I_{mélange 1}$) avec le profil de densité d'ions correspondant à $I_{mélange 2}$ affecté par la polarisation de surface du PTPE est donné par la Figure 97. Cette représentation est donnée pour la configuration face-à-face mais le même type de raisonnement peut être appliqué dans les chargeurs concentriques.

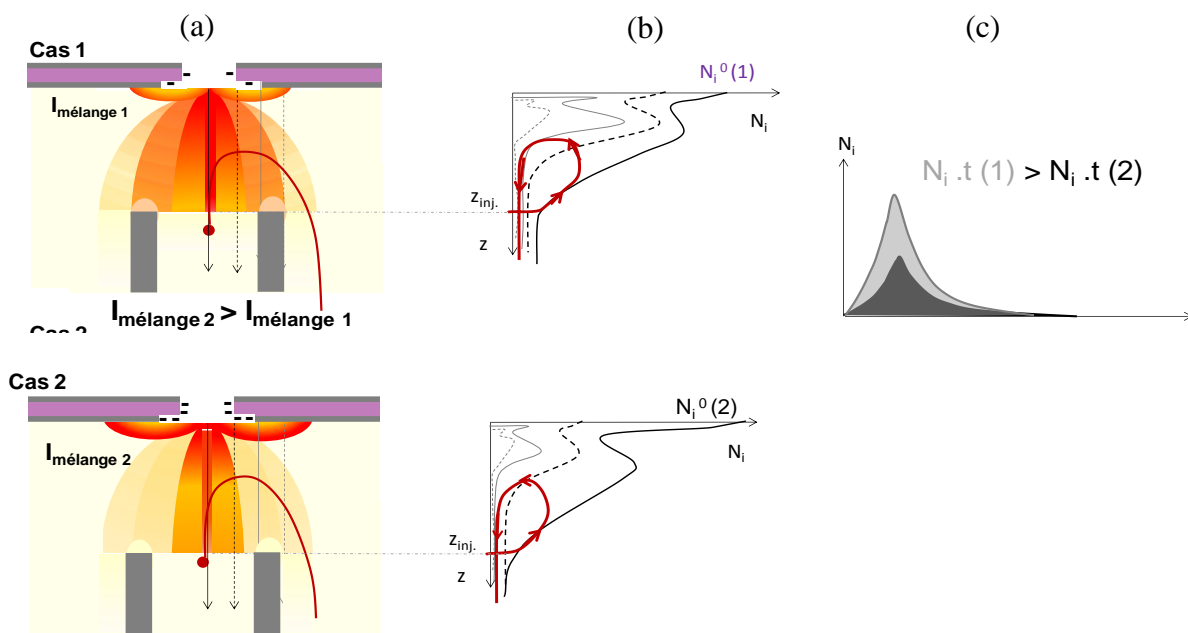


Figure 97 : descriptif de la charge de l'aérosol pour deux courants de décharge différents : profil de densité d'ions et trajectoire d'une particule (a) dans l'espace (b) sur les axes z parallèles à l'axe de symétrie (c) évolution temporelle de la densité d'ions sur la trajectoire d'une particule

Les schémas de la Figure 97(a) représentent les profils de densité d'ions en sortie d'extracteur. Le profil de densité d'ions est représenté avec une dégradation de couleur du rouge pour les densités les plus élevées au jaune pour densités les plus faibles.

Le cas 1 (en haut) correspond à un courant $I_{mélange}$ faible (< 300 nA en régime Trichel, $I_d < 30$ μ A). Une fraction du courant $I_{mélange}$ est collectée sur le plan en aval de l'extracteur (qui correspond aux densités d'ions représentées par les deux lobes sous le plan). Pour un courant $I_{mélange}$ plus élevé, le champ électrostatique entre le PTPE et le plan augmente ainsi que la fraction d'ions collectée réduisant ainsi la densité d'ions dans le reste du volume du chargeur.

L'évolution de la densité d'ions sur les différents axes parallèles à l'axe de l'extracteur est représentée sur les Figure 97(b). La densité d'ions décroît en s'éloignant de l'injection des ions, cependant, le confinement d'ions dû à la canule conduit à un volume de fortes densités d'ions au dessus de la canule d'injection d'aérosol avant de décroître à sa proximité. D'où l'apparition d'un maximum sur les profils axiaux de densité d'ions.

La trajectoire de l'aérosol est supposée identique dans les deux profils, c'est-à-dire qu'elle n'est pas affectée par la charge de l'aérosol. L'évolution des profils d'ions est similaire pour les deux courants de décharge. Cependant, en raison du champ de surface, la décroissance de la densité d'ions est plus « raide » pour le courant $I_{mélange\ 2}$. La trajectoire de l'aérosol à partir de son injection jusqu'à la sortie du chargeur est aussi représentée (en rouge avec des flèches). Par conséquent, même si le courant $I_{mélange\ 1}$ est plus grand, la densité d'ions vue par la particule sur sa trajectoire est plus faible pour le courant $I_{mélange\ 2}$. Comme le temps de charge est identique, le produit $N_i.t$ dans le cas 2 est plus faible que celui obtenu dans le cas 1.

V.5.5. Trajectoire de la particule selon son diamètre

La troisième hypothèse repose sur la modification de la trajectoire des aérosols, affectée par la dynamique de charge (cf. § V.5.2). Cette hypothèse est d'abord démontrée en utilisant dans les mêmes conditions des particules de tailles différentes.

V.5.5.1. Présentation des résultats

Dans les chargeurs testés ici où la densité d'ions est hétérogène, un exemple d'évolution du nombre de charge q_p selon le diamètre dans la configuration face-à-face est représenté sur la Figure 98 pour trois tailles 100, 460 et 820 nm.

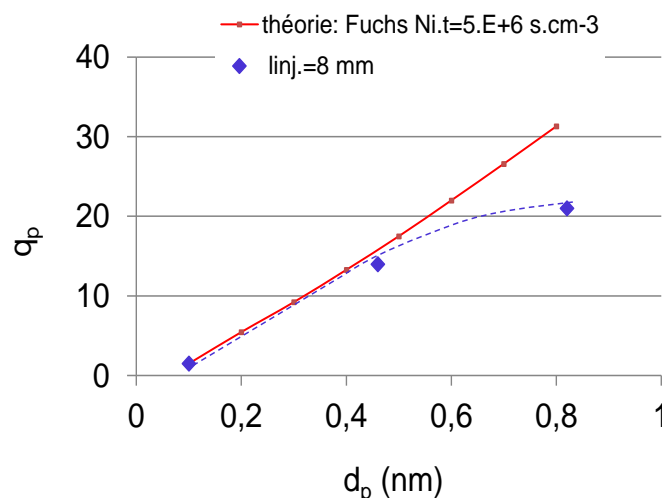


Figure 98 : relation charge-diamètre (théorie & expérience) $I_d= 30\ \mu\text{A}$, $I_{mélange} = 350\ \text{nA}$, $l_{inj}= 8\ \text{mm}$

Comme attendu, le nombre moyen de charge par particule est plus élevé pour l'aérosol de 820 nm que pour celui de 460 nm. En effet, le niveau charge par diffusion dépend au premier ordre de la taille de l'aérosol et évolue en d_p^x (avec $1,03 < x < 1,35$ selon la gamme de diamètre considérée, cf. Figure $q_p(dp)$ du Chapitre 5).

Le produit $N_{i,t}$ estimé par la loi de Fuchs est cependant plus faible, de l'ordre de $3 \cdot 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ pour des particules de 460 nm contre $1,2 \cdot 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ pour des particules de 820 nm.

L'évolution du produit $N_{i,t}$ estimé selon le courant $I_{mélange}$ pour chacune des configurations est donnée par la Figure 99.

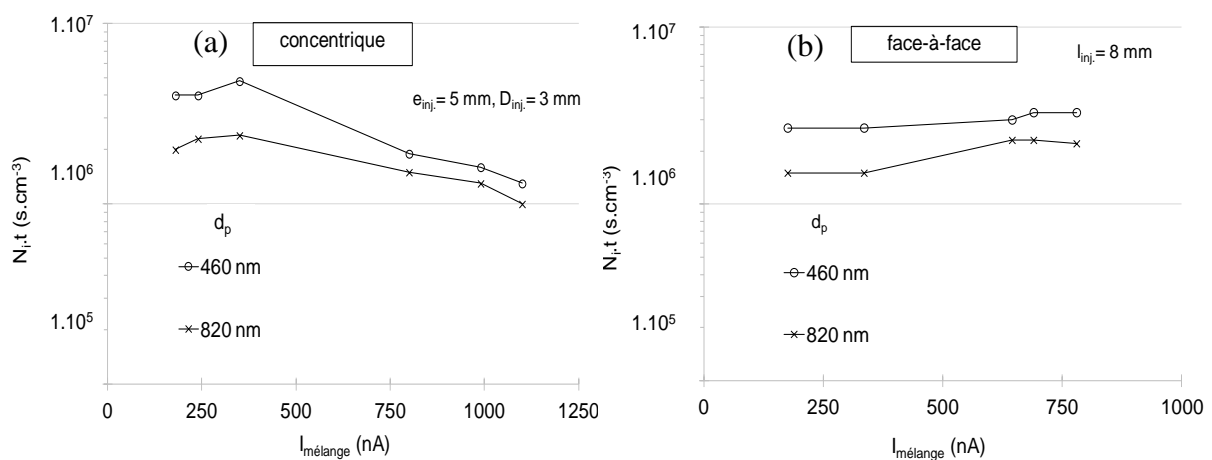


Figure 99: produit $N_{i,t}$ pour des diamètres $d_p = 460$ et 820 nm selon $I_{mélange}$ dans la configuration concentrique ($e_{inj.} = 5 \text{ mm}$, $D_{inj.} = 3 \text{ mm}$) et: face-à-face : $l_{inj.} = 8 \text{ mm}$.

Les produits $N_{i,t}$ évoluent selon les mêmes tendances dans chaque configuration pour des tailles de particules différentes. Cependant, le produit $N_{i,t}$ estimé pour les particules de taille 820 nm est plus faible. En concentric, le produit $N_{i,t}$ varie entre $1,5 \cdot 10^6$ et $5 \cdot 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ et entre $1 \cdot 10^6$ et $2 \cdot 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ pour des aérosols de diamètre $d_p = 460 \text{ nm}$ et 820 nm respectivement. En face-à-face, il varie entre $2,7 \cdot 10^6$ et $3,3 \cdot 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ pour $d_p = 460 \text{ nm}$ et entre $1,4 \cdot 10^6$ et $2,3 \cdot 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ pour $d_p = 820 \text{ nm}$.

Cet écart de $N_{i,t}$ entre les particules de 460 nm et 820 nm peut s'expliquer par la dérive électrostatique couplée à une dynamique de charge plus rapide des particules de diamètre plus grand (le temps requis pour acquérir une charge diminue avec le diamètre des particules).

V.5.5.2. Analyse phénoménologique

Rappelons, que pour la configuration face-à-face, le diamètre d'extracteur et d'injection d'aérosol sont de 2 et 4 mm. A débits de gaz égaux (30 L.min^{-1}), la vitesse moyenne des ions en sortie d'extracteur est 4 fois plus élevée qu'en sortie de la canule d'injection d'aérosol.

La Figure 100 illustre le comportement de deux particules de diamètres différents injectées dans une densité d'ions hétérogène supérieure à 10^7 cm^{-3} pour un chargeur face-à-face. La Figure 100 (c) représente l'évolution de la densité d'ions sur les différents axes parallèles à l'axe de l'extracteur (représentés sur les figures de milieu).

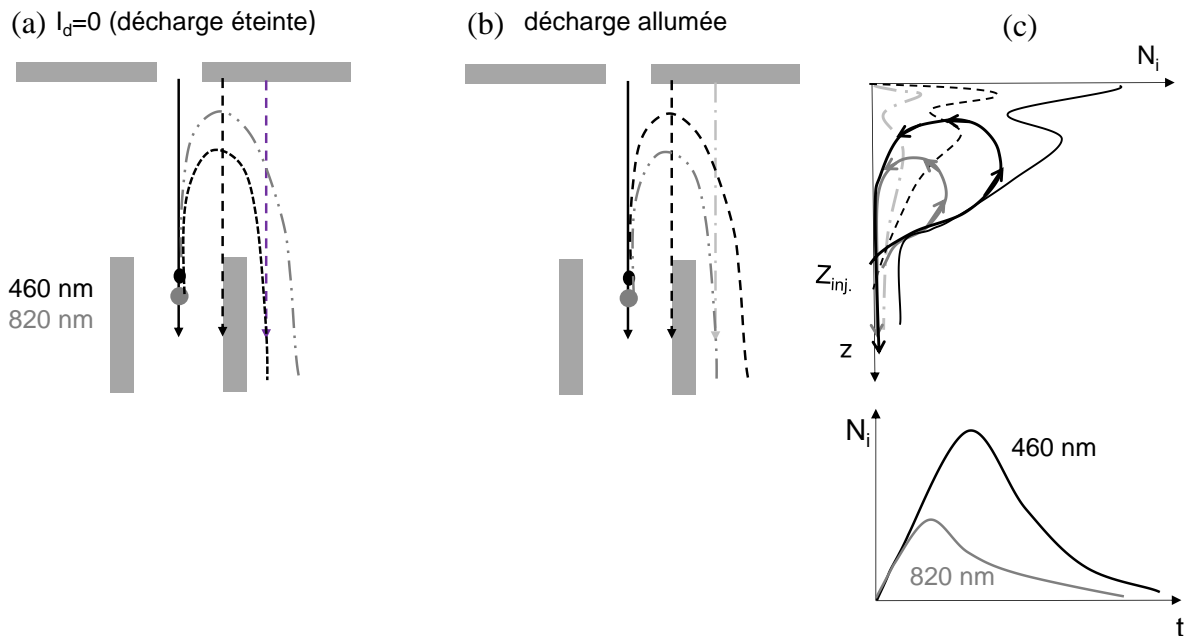


Figure 100: influence de la dynamique de charge sur la trajectoire d'aérosol de taille différente (460 nm et 820 nm) (a) trajectoire des aérosols sans ions, (b) trajectoire avec ions (c) profil de N_i le long de la trajectoire d'un aérosol et dans le temps

Si deux particules de tailles différentes sont injectés simultanément et depuis la même position dans le chargeur avec $I_{mélange}=0$ (décharge éteinte cf. Figure 100c), la particule de grand diamètre parcourt une distance plus grande (de l'ordre de quelques centaines de μm) vers l'extracteur en raison de son temps de relaxation (m.B avec m en kg la masse de la particule et B en s.kg^{-1} sa mobilité mécanique) plus grand lié à l'inertie de la particule (e.g. $0,9 \mu\text{s}$ pour 460 nm contre $2,5 \mu\text{s}$ pour 820 nm). Pour un courant $I_{mélange}$ non nul, les deux particules se chargent au fur et à mesure qu'elles avancent dans les densités d'ions. La particule de plus grand diamètre se charge plus rapidement (pour un produit $N_i.t$ plus faible). Une fois chargée, le champ de charge d'espace la dévie vers des densités d'ions plus faibles, quand celle de petit diamètre est encore "insensible" au champ électrique jusqu'à ce qu'elle acquière la première charge et soit soumise à la force électrostatique. Si l'effet de la dynamique de charge était négligeable sur la trajectoire de la particule, le produit $N_i.t$ pour la particule de plus grand diamètre serait donc plus élevé que celui pour la particule de petit diamètre. En effet, ayant une inertie plus grande, la particule de plus grand diamètre parcourt

une distance plus grande dans les fortes densités d'ions (Figure 100b). L'effet de la dynamique de charge sur la trajectoire des particules l'emporte sur l'effet de l'inertie. Les trajectoires des particules des deux tailles sont données par la Figure 100 (c) en haut. La densité d'ions "vue" par chaque particule en fonction du temps de charge (la densité intégrée sur le temps donné le produit $N_i.t$) est donnée par Figure 100 (c) du bas.

Pour une densité d'ions donnée, une particule de 460 nm met en moyenne 3 fois plus de temps à acquérir une charge qu'une particule de 820 nm. Pour une densité d'ions de 10^8 cm^{-3} , ce temps est de l'ordre de 0,6 ms. L'estimation de l'écart de distance parcourue est de l'ordre de quelques centaines de μm jusqu'au millimètre selon le profil de vitesse du gaz. En raison cette différence de trajectoire liée à la dynamique de charge peut être à l'origine l'écart de $N_i.t$ vu par les particules de tailles différentes.

Toutefois, cet effet n'est pas confirmé sur des particules de tailles inférieures à 460 nm qui voient toutes un $N_i.t$ similaire (cf. § VI.2). Il est envisageable que bien que cet effet de dynamique de charge soit actif, il soit compensé par la dérive électrostatique des particules. Une particule plus petite se charge moins vite, rencontre une densité d'ions maximale plus grande ; mais une fois chargée, le champ de charge d'espace plus intense et sa mobilité plus grande la dévie plus rapidement dans les volumes de faible densité d'ions. Des investigations complémentaires sont requises pour comprendre cet effet. Il faut signaler que cette analyse est basée sur une loi de charge (validée dans des densités d'ions homogènes par de nombreux auteurs) qui n'est peut-être plus valide dans des densités d'ions hétérogènes. En effet, l'une des hypothèses utilisées sur laquelle repose la théorie est la vitesse isotrope des ions. Dans nos conditions, cette hypothèse n'est plus valide en raison du champ de charge d'espace.

V.5.6. Position d'injection d'aérosol : profil de densité d'ions et trajectoire

Les effets de la position d'injection sur le profil de densité d'ions, le "temps de charge" et la trajectoire de l'aérosol sont illustrés par la Figure 101 dans la configuration face-à-face.

Le schéma de la Figure 101 représente la trajectoire de l'aérosol pour trois positions d'injection l_{inj} . 6, 8 et 14 mm, pour un courant $I_{mélange}$ identique. Pour un courant de décharge $I_{mélange}$ pour lequel l'évolution du nombre de charge est croissante ($I_{mélange} < 200 \text{ nA}$), le nombre moyen de charge par particule est d'environ $q_p = 20, 17$ et 13 pour $l_{inj} = 14, 6$ et 8 mm respectivement.

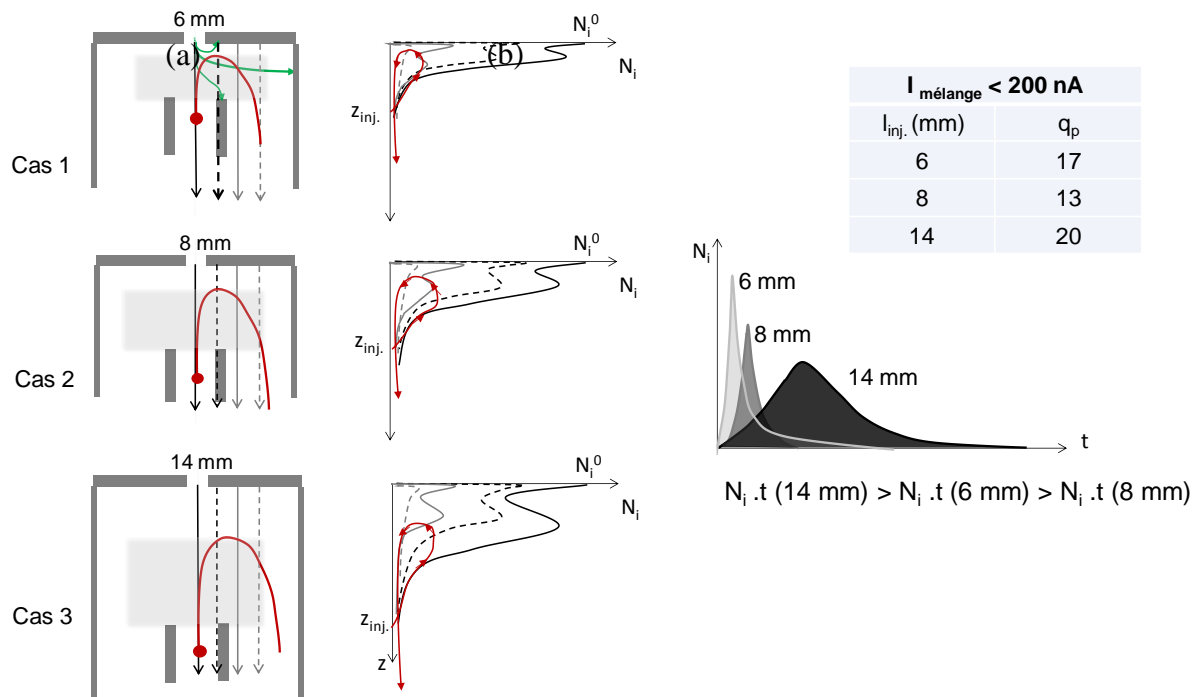


Figure 101: charge de l'aérosol en fonction la position d'injection (face-à-face)

Pour ces trois positions d'injections, le profil de densité d'ions, la trajectoire de l'aérosol et "le temps de charge apparent" sont affectés.

En effet, à courant $I_{\text{mélange}}$ constant, la position des masses affecte la répartition des ions donc le profil de densité d'ions. De plus, la trajectoire d'un aérosol de diamètre donné peut être affectée par le profil de densité d'ions (cf. §V.5.4). Or, le temps de charge apparent (dans les densités élevées) dépend du profil de densité d'ions et de la trajectoire de l'aérosol.

Il faut noter que la trajectoire de l'aérosol est gérée à la fois par les forces hydrodynamiques et électrostatiques. Rappelons, que pour la configuration face-à-face, le diamètre de l'extracteur est de 2 mm et le diamètre de l'injection de l'aérosol est de 4 mm. Les deux débits des gaz étant égaux ($30 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$), la vitesse moyenne des ions en sortie d'extracteur est 4 fois plus élevée que celle des aérosols. Selon la position d'injection, la vitesse de gaz et donc la distance que parcourt la particule dans le volume entre les injecteurs d'ions et d'aérosol, évolue.

Pour la position d'injection la plus proche ($l_{\text{inj.}}=6 \text{ mm}$), l'aérosol est injecté dans des densités d'ions élevées. Malgré cela, "le temps de charge apparent" que passe l'aérosol dans ces densités d'ions est petit (de l'ordre de quelques ms). Le reste du temps de charge, l'aérosol transite dans des densités d'ions inférieures à 10^7 cm^{-3} (cf. §.V.5.3).

Pour la position d'injection la plus éloignée (14 mm) de l'extracteur d'ions, l'aérosol est injecté dans des densités d'ions au moins 2 ordres de grandeurs plus faibles que dans le cas précédent. Cependant, l'aérosol parcourt une distance plus grande vers l'extracteur et "avance " vers des densités ioniques de plus en plus fortes.

Le dernier cas ($l_{inj} = 8$ mm) est un cas intermédiaire entre les deux précédents.

Nous avons ainsi démontré que les deux hypothèses émises sont valides et peuvent rendre compte de la réduction du produit $N_i.t$ vu par les particules lorsque le flux d'ions $I_{mélange}$ augmente dans la phase II

Ces résultats montrent que l'injection d'aérosol dans la plus forte densité n'est pas forcément favorable à la charge si le temps que l'aérosol passe dans ces densités est petit. Un compromis entre densité maximale d'ions et temps de charge efficace est donc à rechercher.

V.5.7. Chargeur concentrique à extracteur métallique

Le but de ce paragraphe est de comparer les $N_i.t$ vu par les particules dans les différents chargeurs concentriques (extracteur métallique ou sandwich) pour compléter l'analyse des conditions de charge présentée précédemment. Ce chargeur est caractérisé en détail au VI.2.2 VI.2. Bien que l'extracteur métallique soit retenu dans le chargeur final, ce dernier ne permet pas de mesurer le courant $I_{mélange}$ requis pour l'évaluation de la densité d'ions initiale N_i^0 et l'analyse de la répartition des ions à l'entrée de la zone de mélange, ce qui justifie que l'analyse du mélange ion-aérosol ait été réalisée avec des extracteurs sandwichs.

Nous avons émis l'hypothèse que la polarisation de la couronne de PTPE dans l'extracteur de type sandwich augmente les pertes sous le plan ce qui se traduit par une densité d'ions plus faible dans la majorité du volume du chargeur. L'extracteur de type métallique permet, à priori, d'extraire un courant $I_{mélange}$ plus faible (pas d'isolant polarisé dans l'extracteur pour limiter les pertes d'ions dans l'extracteur). Cependant, il permet de s'affranchir du champ de surface du PTPE afin de tester cette hypothèse.

Pour ce test, la configuration concentrique a été sélectionnée pour cinq raisons :

-la perte de charge plus faible dans l'extracteur (200 mbar contre 450 mbar en face-à-face), il est probable que le plan inférieur de l'injecteur (cf. Figure 88) limite les turbulences en aval de l'extracteur et donc la perte de charge,

-la stabilité de la pression dans le chargeur: c'est la configuration pour laquelle les fluctuations de pression et donc du débit d'aérosol sont les plus faibles (<2 mbar).

-la possibilité de moduler le temps de charge notamment en utilisant le piège à ions pour confiner les ions (le mélange face-à-face est moins flexible en raison de la canule d'injection des aérosols)

- et enfin des produits $N_i.t$ équivalents dans les deux mélanges malgré une densité d'ions plus grande en entrée du mélange concentrique, compensée par des densités d'ions plus faibles en deçà du plan d'injecteur (cf. Figure 102).

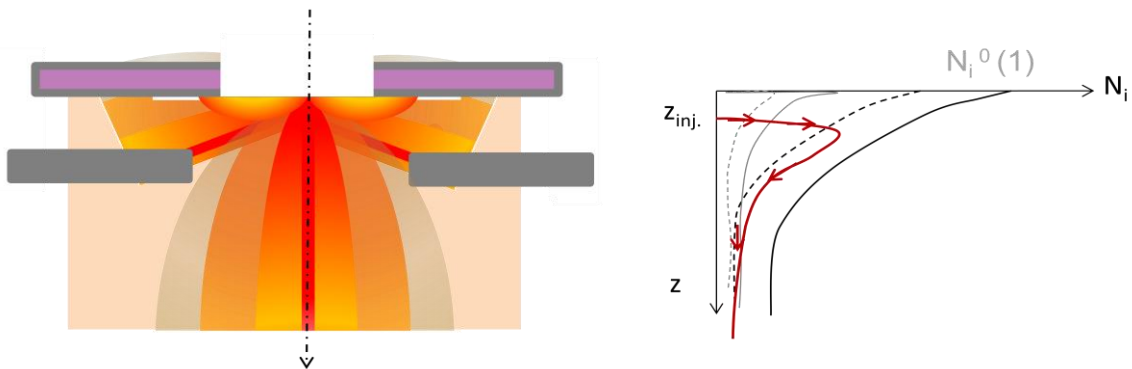


Figure 102: descriptif du profil de densité d'ions dans la configuration concentrique et trajectoire d'une particule dans le plan Ni-z

Sans rentrer dans les détails, la géométrie du mélange retenue a été optimisée en termes de pertes de charge minimales et de courant $I_{\text{mélange}}$ maximum avec un extracteur sandwich (cf. Figure 88), les paramètres retenus sont $D_{inj} = 5$ mm et $e_{inj} = 3$ mm, on assume ici que cette optimisation reste valide pour un extracteur métallique. Le nombre moyen de charge par particule selon le courant I_d dans la configuration concentrique ($e_{inj} = 3$ mm, $D_{inj} = 3$ mm) avec un extracteur métallique ($D = 2$ mm) est représenté sur la Figure 103.

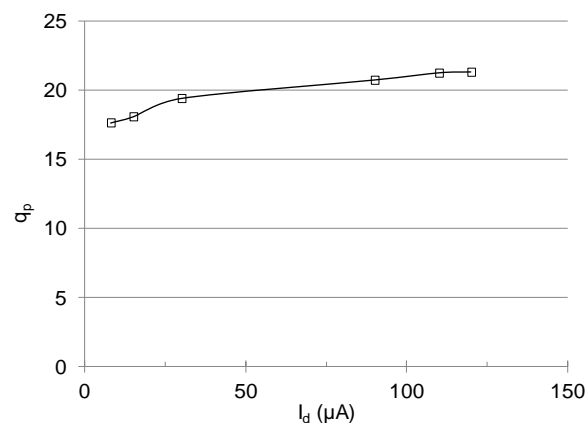


Figure 103: évolution du nombre moyen de charge q_p en fonction du courant $I_{\text{mélange}}$

Le nombre moyen de charge par particule est plus élevé que ceux obtenus avec des extracteurs de type sandwich (jusqu'à 22 contre moins de 16 pour les extracteurs sandwich).

Ce nombre moyen de charge par particule croit avec le courant de décharge I_d sur toute la gamme de 8 à 120 μA . L'augmentation des courants I_d et $I_{\text{mélange}}$, et donc de la densité d'ions en tout point du chargeur (en absence de la polarisation de surface créée par le PTPE), implique l'augmentation des produits $N_i.t$ vu par les particules contrairement au cas des extracteurs sandwichs.

Remarque : si la densité d'ions initiale dans ce mélange (N_i°) ne peut être évaluée, elle est surement plus faible que dans le cas des extracteurs sandwich qui limitent les pertes d'ions dans l'extracteur des ions ($N_i^\circ_{\text{métallique}} < N_i^\circ_{\text{sandwich phase II}}$).

En résumé, deux hypothèses peuvent expliquer le caractère croissant ou décroissant du niveau de charge (et donc du $N_i.t$) avec l'augmentation du flux d'ions entrant dans le chargeur $I_{\text{mélange}}$:

- Soit il existe une densité d'ions initiale critique (transition phase I/II) pour laquelle la répartition des ions dans le chargeur (cf. §V.5.4.2 et/ou la dynamique de charge (cf. §V.5.5.2) est défavorable au produit $N_i.t$.
- Soit il existe une valeur critique du champ surfacique du PTFE pour laquelle la répartition des ions dans le chargeur et/ou la dynamique de charge est défavorable au produit $N_i.t$.

Les critères de choix du chargeur étant liés aux contraintes métrologiques de l'instrument, le choix de l'extracteur (métallique) et de la configuration concentrique sont justifiées dans le chapitre suivant avant la caractérisation finale du chargeur notamment en termes de relation charge- diamètre sur toute la gamme de taille.

V.6. Conclusions.

Dans ce chapitre, nous avons caractérisé la charge de l'aérosol en fonction du mélange ions-aérosols. Des aérosols monodispersés, ont permis d'évaluer le produit $N_i.t$ à partir du courant de particules chargées lié au nombre moyen de charges par particule.

Une étude préliminaire a montré qu'un mélange ions-aérosol non-axisymétrique conduit à une relation charge i.e. mobilité selon le diamètre (q_p ou $\mu_p = f(N_p)$) bijective, critique pour limiter les ambiguïtés pour la séparation en taille. Cependant, la relation courant de particules chargées-concentration d'aérosol [$I_p = f(N_p)$] est non linéaire, ce qui complique la séparation en taille et l'inversion de données. Les mélanges non-axisymétriques sont donc exclus.

Deux configurations de mélange axi-symétriques ont été étudiées avec un extracteur des ions de type sandwich (métal-isolant-métal pour mesurer les courants d'ions dans le chargeur): face-à-face et concentrique. Le courant d'ions $I_{\text{mélange}}$ est contrôlé au premier ordre par la position des masses (i.e. par la position de l'injecteur d'ions : canule en face-à face et plan en concentrique). Pour une position donnée, l'effet de l'aérosol sur $I_{\text{mélange}}$ est négligeable. La répartition des ions dans le chargeur est contrôlée par une compétition électrohydrodynamique qui, comme dans l'extracteur (cf. chapitre IV), dépend du rapport du temps de transit des ions sur le temps de dérive électrostatique.

La comparaison des configurations de mélange a montré que dans une densité hétérogène d'ions, le nombre moyen de charge et donc le produit $N_i.t$, dépendent de trois variables :

- le temps de charge ; il a été montré que l'aérosol est chargé dans les premières millisecondes où la densité d'ions est la plus élevée ($>10^8 \text{ cm}^{-3}$).
- la densité d'ions vue par la particule le long de cette trajectoire : avec un extracteur sandwich, le produit $N_i.t$ vu par les particules augmente avec $I_{\text{mélange}}$ (pour $I_{\text{mélange}} < 200\text{-}300 \text{ nA}$ selon la géométrie de la zone de mélange), puis diminue. Deux hypothèses expliquent cette décroissance. L'une est liée au champ de polarisation de surface de la couronne du PTPE dans l'extracteur, qui réduit la densité d'ions dans le chargeur malgré un flux d'ions entrant plus grand. La seconde est liée à la trajectoire des particules.
- la trajectoire de la particule est rétro-contrôlée par la dynamique de charge : des particules de tailles différentes (au dessus de 460 nm) ne voient pas le même $N_i.t$. En effet, le temps nécessaire pour acquérir une charge diminue avec la taille des particules qui sont donc déviées par le champ de charge d'espace ionique dans des densités d'ion plus faibles.

Nous avons ainsi démontré que l'injection d'aérosol dans la plus forte densité n'est pas forcément favorable à la charge, si le temps que l'aérosol passe dans ces densités est trop faible. Un compromis entre densité maximale d'ions et temps de charge efficace est donc à rechercher.

Le mélange concentrique avec extracteur métallique ($D=2,1 \text{ mm}$; $D_{\text{inj}}=5 \text{ mm}$ et $e_{\text{inj}}=3 \text{ mm}$) a donc été retenu comme chargeur à partir des avantages suivants par rapport au mélange face-à-face : temps de charge modulable, perte de charge plus faible et constante et produit $N_i.t$ maximum. La caractérisation de chargeur est l'objet du paragraphe §.VI.2

VI. TEST DE L'INSTRUMENT : caractérisation du chargeur et du séparateur

VI.1. Introduction

Cet instrument doit permettre d'évaluer les variations de concentration d'aérosols atmosphériques sur au moins deux gammes de taille. Les critères de sélection du chargeur et le dimensionnement du séparateur électrostatique sont définis à partir des contraintes métrologiques de l'instrument (cf. §II.2 - Stratégie):

- Temps de réponse de 100 ms,
- Etendues de mesure: en concentration totale [10^3 - 10^5] cm^{-3} , en taille [10-1000] nm
- Résolution en concentration de l'ordre de [10^2 - 10^3] cm^{-3} selon la gamme de taille sur au moins deux gammes de taille.

Après avoir défini les critères de choix du chargeur, les relations courant-concentration, charge/mobilité-diamètre et les distributions de charge pour différents diamètres sont définies. Le séparateur électrostatique est alors dimensionné à partir de la relation mobilité diamètre. Pour identifier les points critiques à améliorer, ce prototype de séparateur est alors caractérisé en termes de limite de détection et résolution en concentration, de temps de réponse à un créneau de concentration d'aérosol (réponse indiciaire) et de pouvoir de séparation en diamètre.

VI.2. Choix et caractérisation du chargeur retenu

VI.2.1. Choix du chargeur

VI.2.1.1. Contraintes métrologiques → Critères de choix du chargeur

Le schéma sur la Figure 104 présente les différentes contraintes métrologiques à respecter et les critères de choix du chargeur correspondants. Pour remplir ces critères, nous jouerons alors sur les variables de contrôle du transport EHD et de la charge des particules identifiées précédemment (cf. § II.2).

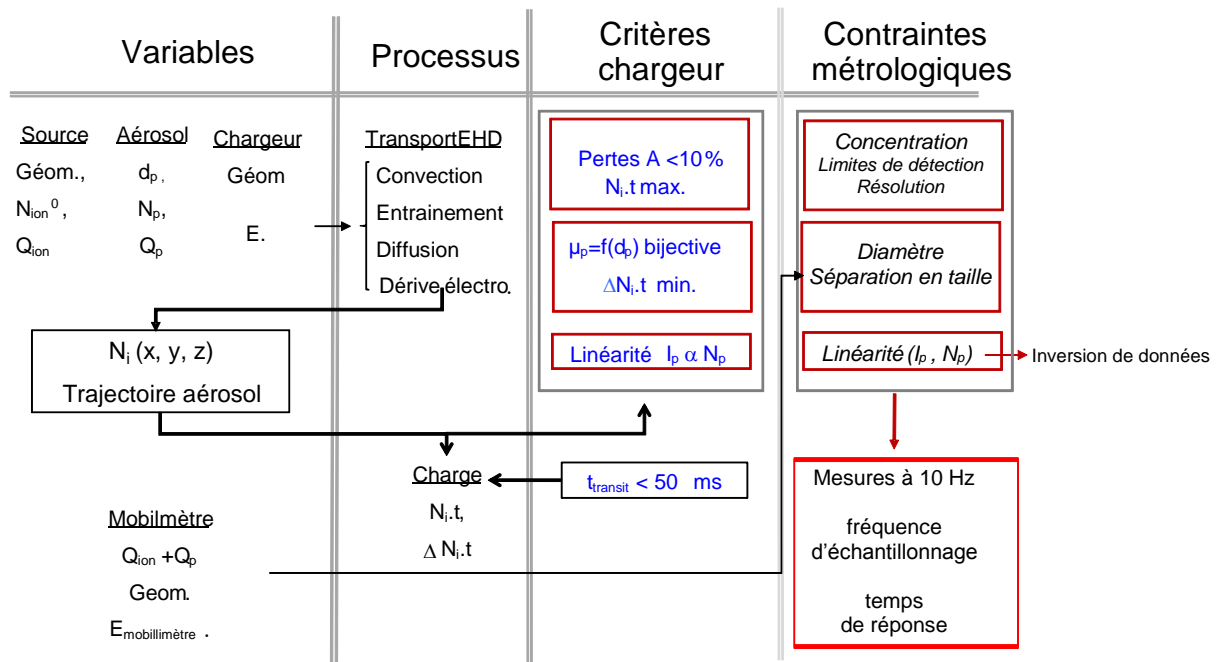


Figure 104: critères de sélection des chargeurs

L'analyse des contraintes métrologiques détaillées ci-dessous permet de définir les six critères retenus pour le choix du chargeur :

1. Temps de transit < 50 ms
2. Pertes d'aérosol < 10 %
3. Charge maximale des aérosols ($N_i.t$ maximal et reproductible)
4. Linéarité de la relation courant-concentration
5. Relation mobilité-diamètre bijective
6. Divergences minimales des conditions de charge ($\Delta N_i.t$)

a. Limite de détection et résolution en concentration

Ces deux caractéristiques métrologiques de l'instrument sont introduites au §II.2.2 et sont liées au courant de particules chargées sur chaque plateau, au bruit de fond du système de mesure ainsi qu'aux caractéristiques de l'électromètre (limite de détection et résolution).

Rappelons que le courant de particules chargées est proportionnel au produit $q_p.N_p.Q_A$, le débit d'aérosol Q_A a ainsi été fixé à 30 L. min⁻¹ (cf. §.II.2.2). Pour un aérosol de concentration donnée, la résolution de l'instrument de mesure sur un plateau est donc d'autant plus grande que le produit $N_i.t$ est élevé et les pertes d'aérosol minimales.

De même, pour abaisser la limite de détection en concentration en deçà 10³ cm⁻³, le courant de particules chargées par plateau doit être supérieur au bruit de fond du système

de mesure (~ 10 fA) et au courant minimum mesurable à 10 Hz qui dépend de l'appareil. Pour un aérosol de concentration donnée, la limite de détection sur un plateau est donc d'autant plus faible que la charge par particule et donc le produit $N_i.t$ sont élevés. (cf.§.II.2.2)

Le critère de limite de détection est nécessaire mais pas suffisant. En effet, les autres critères ne seront vérifiés que si ce critère est rempli. Si un chargeur ne permet pas d'atteindre des produits $N_i.t$ supérieurs à 10^6 s.cm⁻³ (par rapport à la limite de charge partielle cf. §.II.2.2) ce chargeur est rejeté.

b. Mesure à 10 Hz

La fréquence d'échantillonnage doit être au moins deux fois supérieure à la fréquence de mesure, soit 20 Hz (théorème de Shanon).

Une fréquence de mesure de 10 Hz signifie que la fréquence de coupure (F_c) de l'instrument est de 10 Hz. La fréquence de coupure est la fréquence d'un signal sinusoïdal dont l'amplitude mesurée est atténuée de 30% par rapport au signal réel. En première approximation (pour un système du premier ordre), la fréquence de coupure est égale à l'inverse du temps de réponse à 63%.

Le temps de réponse de l'instrument $t(63)$ est défini comme le temps que le système de mesure, soumis à un créneau de signal en entrée, met pour atteindre 63% de la valeur finale, indépendamment du temps de transit dans le système qui n'implique qu'un délai de détection facile à corriger si le signal à mesurer reste constant pendant ce délai. Cela impose un temps de transit de l'aérosol dans l'instrument inférieur à 100 ms (cf.§. II.2.1).

Pour atteindre ce temps de réponse sur des aérosols submicroniques jusqu'à 10 nm, le courant minimum mesurable à 10 Hz dépend de l'appareil de mesure du courant de particules chargées, qui doit être choisi en conséquence.

Enfin, l'électromètre impose des contraintes en termes de courant minimal, la limite théorique du courant mesurable à 10 Hz et de 6 fA (cette limite dépend de l'appareil de mesure e.g. 10 fA pour l'électromètre Keithley 6514). Toutefois le bruit de fond induit par le rayonnement électromagnétique ambiant et les défauts de blindage du séparateur (alimentation en tension du piège à ion et du séparateur et électromètres compris) peut être bien supérieur à cette limite théorique (1 pA dans le cas du premier test réalisé).

Le courant de particules chargées doit donc être supérieur à cette valeur sur chaque plateau.

c. Linéarité courant-concentration d'aérosol ($I_p \propto N_p$)

La linéarité entre le courant de particules chargées et la concentration d'aérosol permet de simplifier l'inversion de données. En effet, si le niveau de charge des particules dépend de la concentration, il est nécessaire d'inverser les données en tenant compte des modifications de mobilité électrique (décalage en diamètre) et du courant de particules (décalage en concentration), toutes deux liées à la grandeur que l'on cherche à évaluer (la concentration).

d. Séparation des gammes de taille selon la mobilité

Le pouvoir de séparation qui est défini ici comme le rapport de la mobilité maximale collectée à 100% sur le premier plateau (petits diamètres) sur la mobilité minimale collectée à 100 % sur le second plateau. Il dépend de la relation charge-diamètre et des caractéristiques du séparateur électrostatique (cf. §.II.2.3).

La séparation des particules chargées selon la mobilité électrique impose une relation mobilité-diamètre ($\mu_p = f(d_p)$) bijective pour limiter les ambiguïtés pour l'inversion de données permettant l'évaluation des concentrations à partir des mesures de courant de particules chargées. Dans le cadre de cette étude, les relations $\langle \mu_p \rangle = f(d_p)$ sont toutes bijectives.

Mobilité électrique moyenne : La Figure 105 représente la relation mobilité électrique moyenne en fonction du diamètre de la particule calculée à partir du modèle de Fuchs pour différents produits $N_i.t$ (de 5.10^5 à 3.10^7 s.cm⁻³) en densité d'ions homogène.

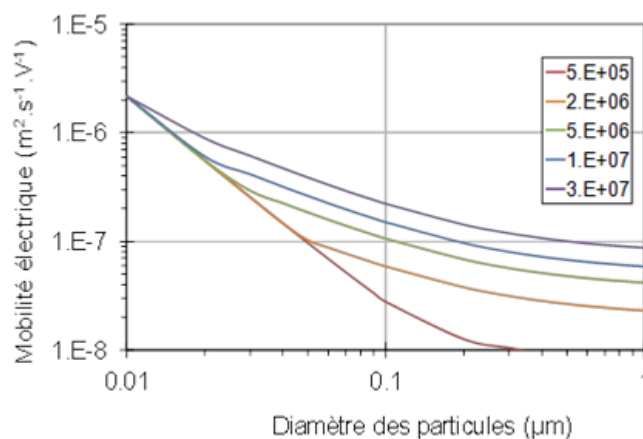


Figure 105: relations mobilité moyenne-diamètre théoriques pour différents produits $N_i.t$ évalués à partir de la loi de Fuchs dans le régime de transition

L'augmentation du produit $N_i.t$ conduit à une relation $\mu_p = f(d_p)$ de pente plus faible et une gamme de mobilité électrique plus étroite, ce qui est défavorable pour la résolution de la séparation électrostatique.

Evaluation de la concentration : pour une gamme de mobilité collectée, les particules ne possèdent pas toutes le même niveau de charge. L'évaluation de la concentration sur cette gamme de taille ne peut être valide que si la gamme de mobilité est étroite : dans le cas contraire une modification de taille de l'aérosol, à concentration constante, induit une variation du courant de particules chargées qui pourrait être, de façon erronée, attribuée à une variation de concentration. Toutefois, il est possible de lever les ambiguïtés en s'appuyant sur des hypothèses concernant la forme des distributions de taille à caractériser ou sur d'autres mesures (soit dans des conditions de charge différentes, soit à partir d'un autre appareil).

Mobilité électrique réelle : la relation mobilité électrique moyenne est représentée en rouge sur la Figure 106 en fonction du diamètre pour un $N_i.t$ de 5.10^6 s.cm^{-3} . Or, la charge de l'aérosol est un phénomène statistique qui conduit à une distribution de charge des particules d'un diamètre donné (courbes en pointillés). De plus, dans nos conditions de densités d'ions hétérogènes, des particules de diamètre identique peuvent « voir » des produits $N_i.t$ différents, ($\Delta N_i.t$ cf. §.II.2.3) qui se traduit par un élargissement de la distribution de charge tracée en traits pleins vert.

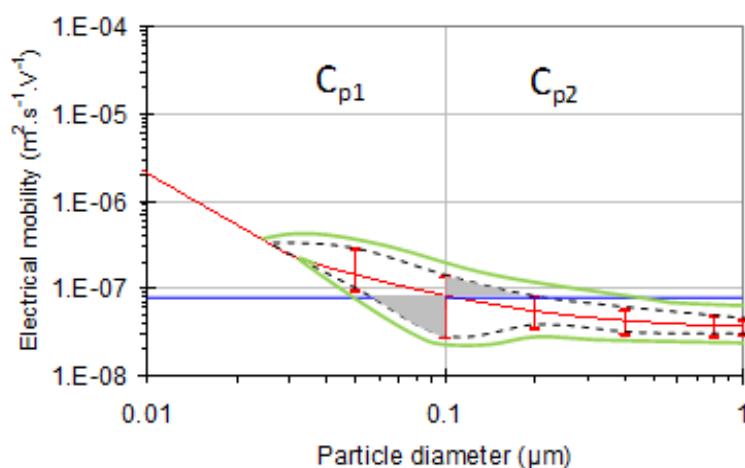


Figure 106 : relation mobilité électrique-diamètre en tenant en compte la distribution de charge pour un $N_i.t$ moyen de 5.10^6 s.cm^{-3}

En séparant sur deux plateaux (faibles et fortes mobilités respectivement au dessus et en dessous du trait bleu sur la Figure 106) autour de $9.10^6 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}.\text{V}^{-1}$, les erreurs induites par la distribution de charge sur la sélection des particules sont indiquées par les zones

grisées (particules grosses, fortement chargées et collectées sur le plateau des faibles mobilités et inversement).

Ambigüité sur l'évaluation de la concentration sur un plateau: une particule de grande taille chargée n fois peut avoir la même mobilité qu'une particule plus petite monochargée et ainsi être collectée sur le même plateau de mesure. L'estimation de concentration à partir du courant est alors délicate puisque n particules monochargées et une grosse particule chargée n fois donne le même courant mesuré pour une concentration différente d'un facteur n . Nous allons donc étudier la relation mobilité-diamètre selon les conditions de mélange ions-aérosol.

Lorsque la résolution en mobilité est suffisante et que les distributions de charge ne dépassent pas 5 charges, il est possible de s'appuyer sur le spectre de mobilité mesuré et les distributions de charge théoriques pour lever les ambiguïtés. C'est le cas de l'analyseur de mobilité différentielle (DMA). Si l'une des conditions n'est pas remplie, il est nécessaire soit de faire des hypothèses sur la forme des distributions de taille, soit de combiner plusieurs mesures (avec un autre appareil, ou dans des conditions différentes) pour limiter les ambiguïtés. Cet aspect de l'inversion de donnée n'est pas l'objet de ce travail et ne sera pas traité plus en détail.

VI.2.1.2. Comparaison des chargeurs

Les principaux résultats obtenus dans chacun des chargeurs étudiés sont synthétisés dans le Tableau 5 selon les différents critères donnés au §VI.2.1.1. Les quatre premiers critères sont remplis en termes de : (i) pertes $< 10\%$, (ii) temps de transit, (iii) linéarité courant-concentration (cf. §VI.2.2.2 pour le chargeur concentrique avec extracteur métallique et mesurée pour les autres chargeurs mais non montré) et (iv) produit $N_{i,t} > 10^6 \text{ s.cm}^{-3}$ (cf. § I.3.8). La stratégie d'étude, basée sur des chargeurs à fortes densités d'ions hétérogènes ($> 10^9 \text{ cm}^{-3}$), s'avère donc payante. En effet, les produits $N_{i,t}$ sont du même ordre de grandeur que dans les chargeurs à densités d'ions homogènes et temps de charge de l'ordre de la seconde. Les deux derniers critères, qui portent sur les écarts de conditions de charge ($\Delta N_{i,t}$) et la relation mobilité-diamètre, sont discutés au §.VI.2.2.3 pour le chargeur retenu.

D'autres arguments, simplicité de réalisation du système, modularité du volume du chargeur pour modifier le temps de transit et pertes de charge sont en faveur des configurations de mélange concentriques (comme discuté au § V.5.7).

La comparaison des chargeurs porte donc essentiellement sur le produit $N_i.t$ maximum atteint dans chaque chargeur. Si des chargeurs de type fil-fente ont été développés et caractérisés afin de limiter les écarts de $N_i.t$, ils ne sont pas présentés car les produits $N_i.t$ sont au minimum deux fois plus faibles que pour les autres chargeurs. Les chargeurs pointe-trou avec extracteur sandwich permettent d'atteindre des $N_i.t$ du même ordre de grandeur ($\sim 4.10^6 \text{ s.cm}^{-3}$). En termes de $N_i.t$, le chargeur concentrique à extracteur métallique est de loin le meilleur des chargeurs développés ($N_i.t$ maximum de $1,25.10^6 \text{ s.cm}^{-3}$).

Tableau 5 : comparaisons des chargeurs selon les critères de choix

CHARGEUR			CRITERES DE CHOIX DU CHARGEUR						REMARQUES	
Source d'ions	Extracteurs	Configurations de mélange	Pénétration	Ni.t (s.cm ⁻³) d _p = 460 nm	Relation μ _p = f(q _p)	ΔNi.t min.	Linéarité I _p / N _p	temps de transit < 50 ms	Simplicité de réalisation et robustesse	Autres
Pointe-trou	métal	concentrique	> 90%	1,3.10 ⁷	bijectives	✓	✓	✓	✓✓✓	t<50 ms (*)
	sandwich	concentrique	> 90%	4.10 ⁶		?	✓	✓	✓✓	t<50 ms (*)
	sandwich	face-à-face	> 90%	3,5.10 ⁶		?	✓	✓	✓	Instabilité pression (**)
Fil-fente (***)	sandwich	concentrique	> 90%	2.10 ⁶		?	✓	✓	✓	t<50 ms (*)
	sandwich	face-à-face	> 90%	2.10 ⁶		?	✓	✓	✓	Instabilité pression (**)

(*) Possibilité de réduire le temps de charge par confinement électrostatique des ions grâce au piège à ions (cf.§.V.5.4.1)

(**) Des fluctuations de pression dans le chargeur sont mesurées en configuration face-à-face (jusqu'à 15 mbar), ces fluctuations de pression conduisent à la fluctuation de débit de prélèvement de l'aérosol.

(***) Résultats non présentés dans le manuscrit

VI.2.1.3. Chargeur retenu

Ioniseur retenu: l'étude paramétrique de la décharge (détaillé dans le chapitre IV) a d'abord permis de choisir les différents paramètres électriques et géométriques en géométries pointe-plan et fil-plan (distance inter-électrodes, $d_{gap}=13$ mm et rayon de courbure, $R_c=80$ μm). En effet, un compromis entre la stabilité de la source d'ions et une tension maximale de 20 kV pour limiter l'encombrement du système avec une durée de vie de la pointe de plusieurs dizaines d'heures. Le rayon de la zone de décharge choisi est 5 cm pour limiter l'effet des parois sur le champ et le courant de décharge à 10% tout en limitant l'encombrement du système. En outre, l'effet du flux de gaz sur le courant de décharge est négligeable mais permet néanmoins de confiner les ions vers l'extracteur. Cet effet est d'autant plus notable que la surface de l'extracteur est plus petite en configuration pointe-plan troué qu'en fil-fente.

Extracteur retenu : malgré des courants extraits plus faibles avec les extracteurs métalliques qu'avec les extracteurs de type sandwich, les produits $N_i.t$ sont plus élevés avec les extracteurs métalliques ($1,3.10^7$ contre 4.10^6 s.cm⁻³). De plus, le champ électrostatique dans le chargeur est moins intense avec des extracteurs métalliques. En effet, dans les extracteurs de type sandwich, la polarisation de l'isolant et le profil spatial de densité d'ions plus hétérogène augmentent le champ électrique (cf. §.V.5.4.2). Afin de limiter la collection électrostatique des particules chargées par le champ électrique, les chargeurs avec extracteurs métalliques semblent donc mieux adaptés. Un extracteur métallique d'épaisseur 1 mm réduite à 0,6 mm au niveau de l'orifice d'extraction à 0,6 mm au niveau de l'orifice de 2,1 mm de diamètre (compromis entre perte de charge et efficacité extraction d'ions), est donc retenu pour le chargeur final.

Configuration de mélange retenue : Le mélange concentrique avec extracteur métallique ($D_{inj}=5$ mm et $e_{inj}=3$ mm, cf. § V.5.7) a été retenu à partir des avantages suivants par rapport au mélange face-face : temps de charge modulable, perte de charge plus faible et constante et produit $N_i.t$ maximum.

De plus, en configuration concentrique, il est possible de diminuer le temps de charge grâce au confinement électrostatique des ions par le champ électrique créé par le piège à ions. En effet, pour la configuration face-à-face, la canule d'injection à la masse fait écran à ce champ (cf. §.V.5.4.1). Le temps restant pourrait alors être utilisé pour la séparation électrostatique, troisième étape lente de l'instrument (prélèvement, charge et séparation).

Ainsi, le chargeur retenu est donc composé d'une source d'ion pointe-plan troué, d'un extracteur métallique et d'une configuration de mélange concentrique.

VI.2.2. Caractérisation du chargeur retenu

Le chargeur retenu remplit les trois premiers critères (i) de charge maximale et reproductible (ii) avec moins de 10 % de pertes d'aérosol pour abaisser la limite de détection et améliorer la résolution en concentration, (iii) pour un temps de transit inférieur à 50 ms afin d'atteindre un temps de réponse de l'instrument inférieur à 100 ms.

Reste donc à caractériser ce chargeur vis-à-vis des trois derniers critères (iv) de linéarité courant-concentration pour permettre l'inversion de données, (v) avec une relation bijective mobilité moyenne-diamètre et (vi) une divergence minimale des conditions de charge ($\Delta N_i.t$ minimal) qui définissent le pouvoir de séparation de l'instrument.

VI.2.2.1. Remarques préliminaire sur la charge initiale de l'aérosol

L'instrument doit caractériser un aérosol de charge initiale inconnue mais à priori faiblement chargé. Il est donc nécessaire de mesurer l'influence de la charge initiale de l'aérosol sur la charge finale, tant pour valider le protocole de production des aérosols monodisperse utilisés pour la caractérisation du chargeur que les résultats obtenus à l'aide de ces protocoles.

Avec des particules de sel de 92 nm, quatre états de charge initiaux ont été testés : des particules chargées une fois, positives ou négatives (selon la polarité du DMA), neutralisées avec un neutraliseur en sortie de DMA et neutres (avec neutraliseur et électro-précipitateur en sortie de DMA). La charge initiale mesurée des particules positives est de $1,03 \pm 0,05$. Cela confirme que moins de 5 % de particules bi-chargées ont été sélectionnées par le DMA.

La charge moyenne en sortie du chargeur est présentée sur la Figure 107 en fonction de la charge initiale pour des concentrations de 10^4 cm^{-3} , $I_d = -110 \mu\text{A}$, $I_{\text{mélange}} > 1200 \text{ nA}$.

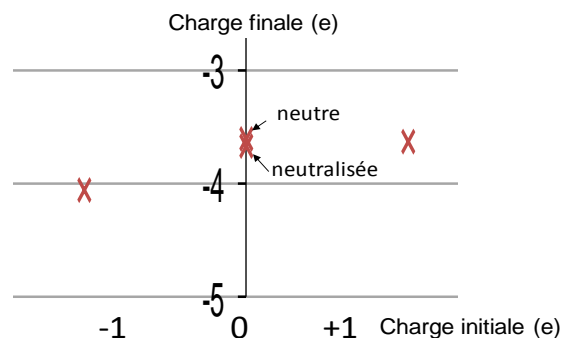


Figure 107: influence de l'état de charge initiale sur la charge des particules de 92 nm

Le même niveau de charge est mesuré à 5 % près pour les particules neutres, neutralisées et initialement chargées positivement. Une augmentation de la charge finale de 10% (de 3,7 à 4,1 charges par particule en moyenne) est mesurée quand les particules sont initialement chargées négativement, comme déjà reporté dans [DAV-85].

L'écart de niveau de charge entre les particules neutres et neutralisées est de l'ordre de 2% (cf. Figure 107), en deçà de l'incertitude de mesure de 5%. Aux vues de ce faible écart reproductible de niveau de charge, les mesures de charge moyennes ont été réalisées avec des aérosols monodispersés, neutralisés pour atteindre la concentration de 10^5 cm^{-3} , plutôt qu'avec des neutres impliquant le précipitateur électrostatique qui ne permet pas de dépasser 10^4 cm^{-3} .

VI.2.2.2. Relation entre le courant d'aérosol chargé et la concentration initiale

Cette relation est nécessaire pour estimer la concentration initiale d'aérosol prélevé à partir du courant de particules chargées. En effet, cela permet de valider que la relation charge-diamètre, décrite au paragraphe suivant, est indépendante de la concentration.

Tout d'abord, la mesure des concentrations en amont et en aval a permis de démontrer que les pertes d'aérosol sont bien inférieures à 10 % sur toute la gamme de taille de 10 à 820 nm.

La Figure 108 représente le courant d'aérosols chargés selon la concentration d'aérosol en entrée du chargeur. L'aérosol salin (cristaux de sel) est produit par le four et sélectionné par le DMA (selon le protocole établi au §III.4.1) pour obtenir un aérosol monodispersé de 92 nm. La variation de concentration de l'aérosol est obtenue en contrôlant la température du four. La difficulté d'une telle représentation est la différence de temps d'échantillonnage des deux appareils qui oblige à interpoler les points de mesure de l'un des appareils, ce qui implique un effet de lissage de la courbe représentée sur la Figure 108

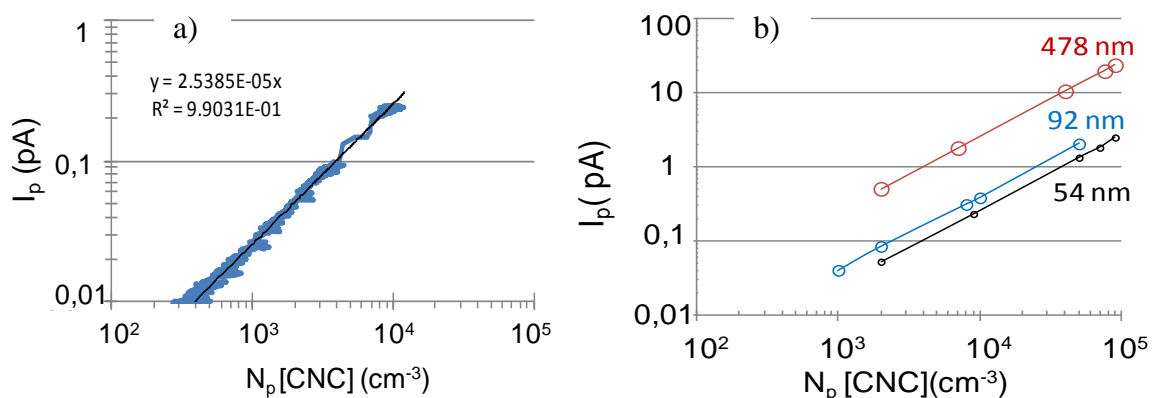


Figure 108: évolution du courant d'électromètre ($Q_{\text{électromètre}}=5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration d'aérosol en entrée mesurée au CNC

La relation courant-concentration est linéaire. La pente correspond à la charge moyenne par particule qui est constante et de 3,7 charges par particule de 92 nm. Cette linéarité a été confirmée pour différentes tailles (50, 92 et 460 nm) et représentée sur la Figure 108b (en valeurs moyennes du courant de particules chargées).

Seuls 5 des 60 L.min⁻¹ sont prélevés dans l'électromètre, le courant total d'aérosol chargé est donc 12 fois plus grand. Pour un aérosol de 92 nm, la limite de détection théorique (pour un courant minimal détectable à 10 Hz de 6 fA, sans bruit de mesure) est donc de 50 par cm⁻³.

Les appareils de mesure utilisés (électromètre et compteur de particules) ont des temps de réponse supérieurs au temps de réponse souhaité (~ 1 s contre 100 ms) et surtout différents ce qui explique la largeur de la courbe. Par la suite, les mesures sont donc moyennées sur 10 secondes pour obtenir les niveaux de charge moyens par particules.

VI.2.2.3. Charge et distribution de charge selon le diamètre pour deux conditions de charge

a. Relation charge-diamètre

Cette caractéristique du chargeur est critique en termes de limite de détection, de dimensionnement du séparateur électrostatique et d'inversion de données de l'instrument.

Les points de mesure de la Figure 109 ont été obtenus selon le protocole défini au paragraphe III.5.3 pour les particules de sel de diamètre inférieur à 200 nm générées avec un four et pour des gouttes d'huile de diamètres supérieurs à 400 nm produites avec le générateur SLG. Le courant de décharge est de -10 ou -110 µA, la pression dans la zone de mélange est de 950 mbar et la température de 20°C. La loi de Fuchs est valide dans le régime de transition $K_{ni} \sim 1$ qui correspond à des particules autour de 40 nm. Les propriétés des ions pour les calculs sont : masse de 80 amu, $\mu_i = 1,8 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ V}^{-1}$, $D_i = 4,5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, $c_i = 278 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$.

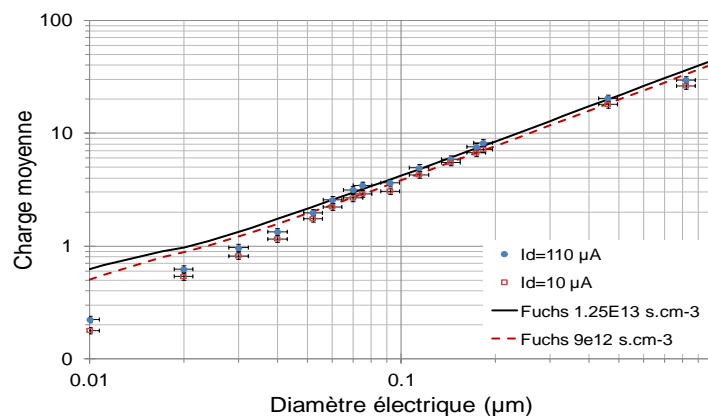


Figure 109: relation charge diamètre pour un courant de décharge de 10 et de 110 µA

Il existe un accord relativement bon entre les mesures et la loi théorique de Fuchs entre 50 et 460 nm pour un $N_{i,t}$ de $1,25 \cdot 10^7 \text{ s.cm}^{-3}$ à courant de décharge de $-110 \mu\text{A}$ et pour $9 \cdot 10^{12} \text{ s.cm}^{-3}$ à $-10 \mu\text{A}$. Il faut souligner que malgré un facteur 10 sur le courant de décharge variant de $-110 \mu\text{A}$ à $-10 \mu\text{A}$, les niveaux de charge ne sont que 15 % plus grands.

La charge moyenne pour les particules de 10 nm est de 0,2 contre 0,6 attendue théoriquement. Les écarts sur les particules fines (<50 nm) sont probablement dus :

- soit aux trajectoires des particules les plus fines qui pourraient être « soufflées » par les turbulences en périphérie des densités d'ions maximales,
- soit à un défaut de calcul des coefficients d'attachement ions-particules de la loi de charge pour la pression de 970 mbar dans le chargeur. À pression atmosphérique, les coefficients ont été validés par comparaison avec la littérature.

Remarque : Contrairement aux chargeurs avec extracteurs de type sandwich, dans ce chargeur à extracteur métallique, toutes les particules de 50 nm à 820 nm voient le même produit $N_{i,t}$. Cela confirme l'effet du champ de surface due à la polarisation des surfaces (cf. §V.5.5).

b. Distribution de charge

L'objectif est d'estimer les écarts de conditions de charge ($\Delta N_{i,t}$) rencontrées par les particules de même taille par comparaison des distributions de charge mesurées et théoriques. Les distributions de charge permettent également d'estimer les recouvrements de mobilité entre deux plateaux adjacents de mobilité électrique (cf. §.II.2.3). La distribution de mobilité électrique présentée sur la Figure 110 (a) est mesurée à l'aide d'un analyseur de mobilité électrique "radial". Les modes théoriques correspondant aux particules multi-chargées sont représentés par des croix, reportés sur la Figure 110 en termes de distribution de mobilité. La Figure 110(b) représente la distribution théorique (trait gras) obtenue pour un $N_{i,t}$ de 10^7 s.m^{-3} et la distribution mesurée est représentée par des carrés (pointillés).

Le niveau de charge moyen estimé à partir des distributions de charge est de 3,2 contre 3,7 avec l'électromètre

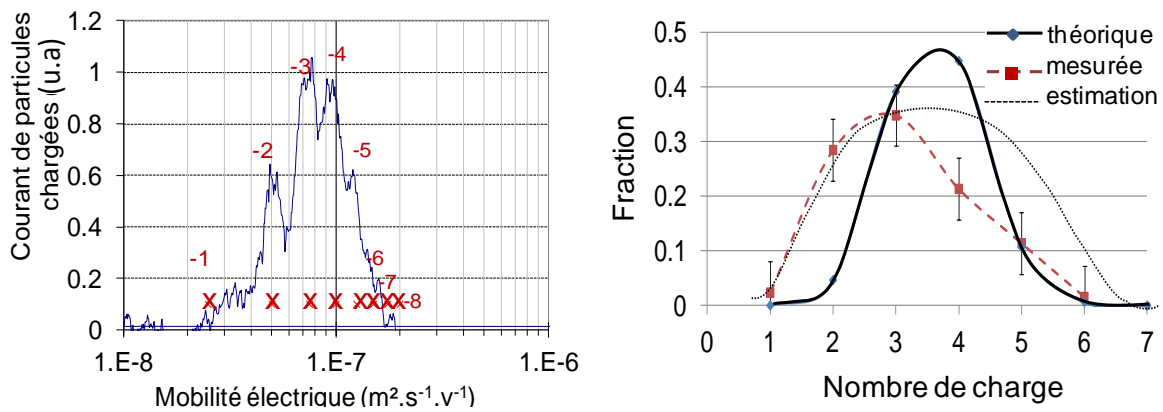


Figure 110: (a) distribution de mobilité et (b) distribution de charge d'un aérosol de 92 nm

La distribution de charge est donc déformée par les pertes des plus chargées avant la mesure ; La courbe en pointillés fin représente une estimation de la forme de la distribution réelle. La distribution est supposée de type Gaussien avec un écart type de 1,5 contre 1,3 attendu théoriquement (trait gras). L'écart de $N_{i,t}$ ($\Delta N_{i,t}$) vu par les particules de même taille est probablement lié aux positions d'injection différentes. Ce $\Delta N_{i,t}$ est estimé grossièrement à partir de la distribution de charge ($7 \cdot 10^6 < N_{i,t} < 2 \cdot 10^7 \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$).

Il convient de souligner que si la résolution du DMA est suffisante pour discerner les différents modes de multi-chargée jusqu'à 5 charges, pour des particules de 92 nm en sortie de notre chargeur, il n'en est plus de même pour des niveaux de charges plus élevés, induisant des distributions de charge qui apparaissent comme unimodales. A titre d'exemple, la Figure 111 représente la distribution de mobilité représentée en diamètre électrique équivalent mesurée avec le DMA tubulaire, pour des particules de 600 nm, en sortie de chargeur (points bleu).

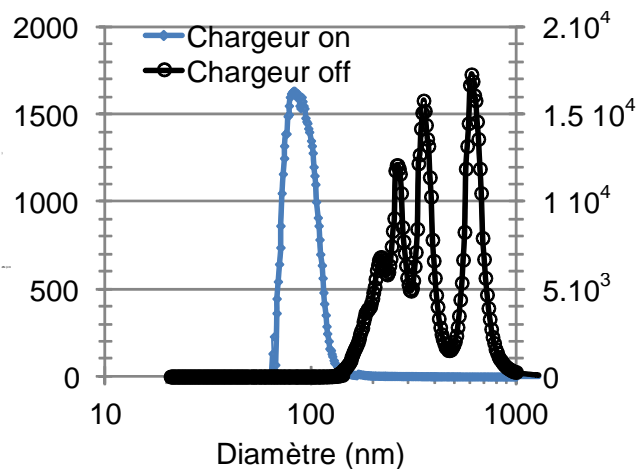


Figure 111 : distributions de mobilités, i.e. de charges représentées selon le diamètre électrique équivalent pour des particules de 600 nm neutralisées par une source ^{85}Kr (décharge off) et chargées en sortie de chargeur (sans neutraliseur).

Si la résolution du DMA ne permet pas de calculer la distribution de charge, il est toutefois possible d'estimer à partir de la gamme de mobilité électrique (i.e. de diamètre électrique équivalent) l'écart de $N_i.t$ vu par les particules. La charge moyenne (diamètre 75 nm) est de 23 charges ce qui est cohérent avec la Figure 109. La gamme de diamètre électrique équivalent est d'environ 66 à 123 nm, ce qui correspond à des particules chargées entre 10 et 30 fois, reporté sur la Figure 112 en termes de distribution de mobilité. Cela correspond à un produit $N_i.t$ compris entre $6.10^6 < N_i.t < 2.10^7 \text{ s.cm}^{-3}$.

VI.2.2.4. Relation mobilité moyenne-diamètre et enveloppe

La Figure 112 représente les mêmes données que celle représentées sur la Figure 109 pour un courant de décharge de $-110 \mu\text{A}$ (en croix rouge et avec un fit polynomial en pointillés). Les mobilités des particules chargées sont représentées selon la taille de l'aérosol. Les barres en noir représentent les mobilités électriques calculées en prenant en compte les distributions de charge présentées sur les Figure 109 et Figure 110.

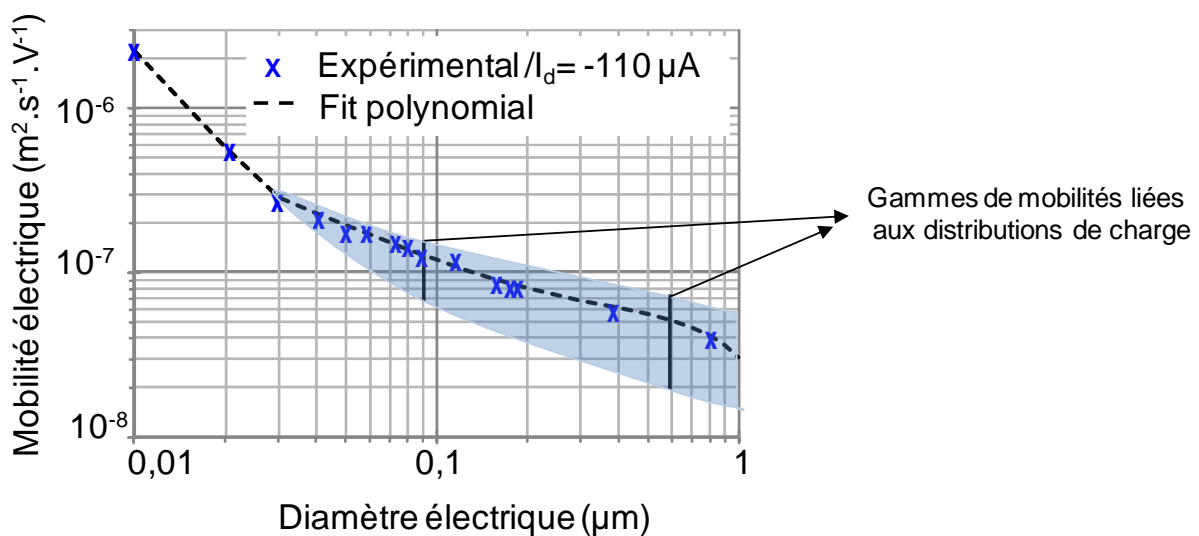


Figure 112 : relation mobilité moyenne-diamètre du chargeur retenu avec enveloppe induite par les distributions de charges

Outre la bijectivité attendue, l'élargissement de l'enveloppe lié à la distribution de charge induit une ambiguïté pour la séparation mobilimétrique. En effet, les particules les plus chargées de diamètre 600 nm possèdent la même mobilité que les moins chargées de diamètre d'environ 80 nm. Pour le diamètre de coupure de 130 nm, mesuré dans le séparateur de test (cf. VI.3.2.3), qui correspond à une mobilité de coupure d'environ $10^{-7} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}.\text{V}^{-1}$, l'enveloppe indique que les particules plus grosses que 300 nm ne devraient pas être collectées sur le premier plateau. Toutefois, cela serait vrai dans un séparateur idéal sous flux laminaire et sera mis en défaut plus tard du fait des turbulences.

VI.3. Faisabilité de l'instrument

VI.3.1. Dimensionnement du séparateur

Une fois les aérosols chargés, il est possible de les séparer soit par des méthodes électrostatiques soit par impaction. L'impaction basse pression requière des pompes couteuses et encombrantes notamment pour les forts débits. Dans le cas de cette étude, la séparation par gamme de mobilité électrique a donc été retenue.

Toutefois dans le temps imparti (50 ms), la sélection des particules les moins mobiles (au dessus de 200 nm) s'avère délicate. En effet, dans les champs électriques maximums (sans claquage électrique), la distance parcourue en 50 ms par ces particules n'est que de quelques centaines de micron impliquant des usinages de précision et surtout des pertes de charge élevées (>100 mbar). C'est pourquoi nous avons choisi de collecter les particules les plus mobiles et de laisser sortir les moins mobiles pour les mesurer en sortie avec un électromètre à cage de Faraday.

La géométrie la plus répandue est de type tubulaire, le régime d'écoulement doit être laminaire pour augmenter le pouvoir séparation. Toutefois cela impose un débit de sheath air de quelques centaines de L.min⁻¹ qui ne sera pas mis en place pour le test.

La première contrainte est d'abaisser le temps de transit total dans l'instrument en deçà de 100 ms. A débit fixé (60 L.min⁻¹), cela définit le volume du séparateur (50 cm³).

Afin d'augmenter le pouvoir de séparation, il faut augmenter la distance de dérive électrostatique (cf. Figure 113), l'aérosol chargé est collecté sur l'électrode centrale. Dans le cas des fortes densités de particules chargées, ce choix n'est pas judicieux en raison du confinement des aérosols chargés qui augmente les répulsions électrostatiques et affecte le pouvoir de séparation et la linéarité du courant mesuré selon la concentration d'aérosols. Toutefois, ce dernier effet a été testé et n'affecte pas la linéarité jusqu'à des concentrations 10⁶ cm⁻³ pour des aérosols de 460 nm en sortie de chargeur.

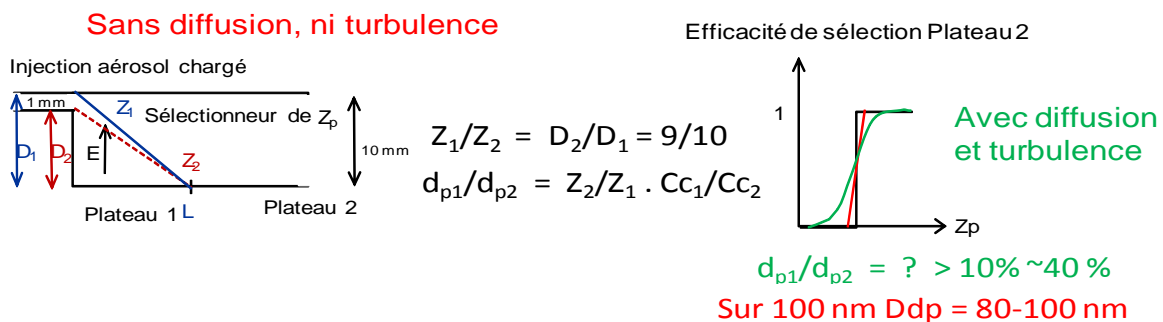


Figure 113: schéma du séparateur de mobilité électrique envisagé et cause d'incertitudes

Afin de limiter les turbulences dans le séparateur électrostatique, le piège à ions a été dimensionné pour obtenir un régime d'écoulement laminaire ($R_e=2200$ en limite de régime transitoire). Par ailleurs, la fente doit être la plus fine possible pour augmenter le pouvoir de séparation. La largeur de la fente d'entrée en régime laminaire implique un recouvrement des mobilités électriques, illustré en rouge sur la Figure 113. De plus, l'écoulement dans le sélectionneur de mobilité n'est pas laminaire et les turbulences induisent un élargissement de ce recouvrement estimé en vert.

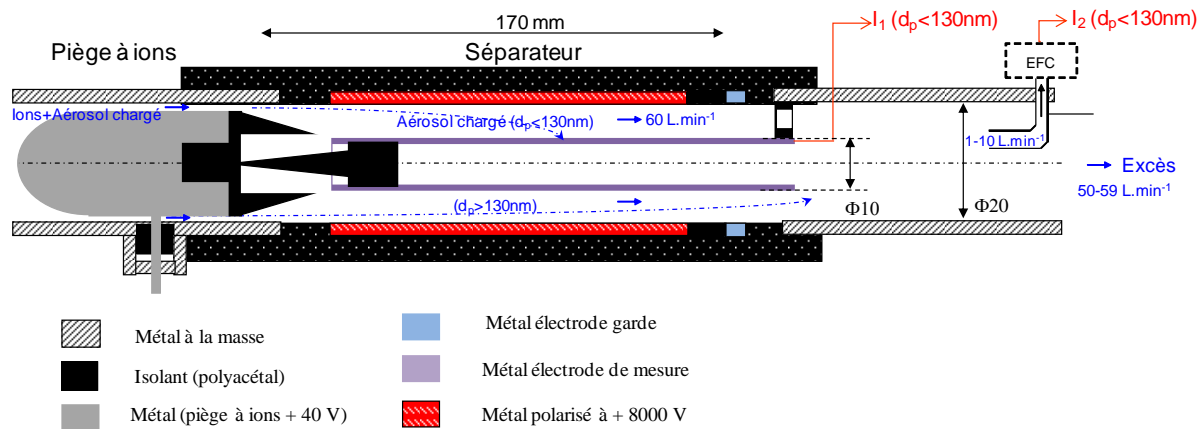


Figure 114. schéma de principe du séparateur électrostatique.

Si la diffusion des aérosols est négligeable pendant les 50 ms dédiées à la sélection en taille et à la mesure, la largeur de fente et les turbulences sont critiques pour la résolution du système.

Le diamètre extérieur est fixé par le piège à ions (20 mm). Pour le test, un seul plateau de collection électrostatique des plus mobiles est utilisé dans le séparateur, les moins mobiles étant mesurées dans électromètre à cage de Faraday l'ECF en sortie (cf. Figure 114).

En effet, la mobilité électrique minimale des particules (de 820 nm) est de $10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$ et le champ maximum sans risque de décharge parasite est de $1,7 \cdot 10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$. Cela implique une distance maximale parcourue de 1,05 mm en 50 ms, très inférieure à la distance de dérive requise pour le pouvoir de séparation, ce qui exclut de collecter ces particules électrostatiquement.

Pour collecter les particules de mobilités supérieures à $1,3 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$ (~100 nm pour ce chargeur), la distance de dérive dans le séparateur doit être de 4.5 mm. Pour atteindre $1,7 \cdot 10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$, la tension à appliquer est de l'ordre de 8000 V.

Afin de limiter les perturbations électromagnétiques, le système est blindé par du papier aluminium. Si le système est simple, la principale difficulté est de limiter les courants de fuite entre les électrodes polarisées et l'électrode de mesure.

VI.3.2. Caractérisation du séparateur et de l'instrument

L'ensemble chargeur, piège à ions, séparateur et ECF constitue l'instrument de mesure. Les trois caractéristiques de l'instrument de mesure évaluées dans cette section sont les limites de détection en concentration, le temps de réponse et le pouvoir de séparation.

VI.3.2.1. Limite de détection en concentration

Dans un premier temps, seule une fraction du débit total ($60 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$) est prélevée dans l'ECF (de 1 à $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$), car $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ est le débit maximum toléré par le filtre de l'ECF.

Le bruit de fond théorique minimum des électromètres fonctionnant à 10 Hz est de 6 fA. Le bruit sur l'ECF est de +/- 20 fA quant au bruit sur le séparateur, il est de +/- 20 fA sans l'alimentation haute-tension connectée mais atteint +/- 1 pA avec une polarisation de 8 kV. Ce bruit est lié à l'alimentation HT et pourrait être réduit en blindant l'ensemble de l'instrument.

La limite de détection devrait être mesurée sur les deux plateaux. Cependant, en raison du bruit de fond actuel du premier étage et du prélèvement partiel de l'aérosol sur le second étage, les limites de détection sont évaluées à partir du bruit de fond et de la charge moyenne par particule

Pour un débit d'aérosol fixé, les limites de détection en concentration dépendent du bruit de fond, de la charge moyenne et de la concentration de l'aérosol sur l'étage considéré donc du pouvoir de séparation (cf. §.VI.3.2.3) qui est pour le moment considéré comme idéal.

Le Tableau 6 présente les charges moyennes des particules collectées sur chacun des deux plateaux (<100 nm et >100 nm) en supposant une concentration de particule constante quel que soit le diamètre. Deux limites de détection en concentration (calculées pour $I_p=I_{BF}$) sont alors évaluées en référence au bruit de fond minimum théorique et mesuré sur le prototype. La dernière ligne correspond au courant mesuré pour la concentration minimale de l'étude.

Tableau 6 : charges moyennes pour des particules collectées sur chacun des deux plateaux (<100 nm et >100 nm) et limites de détection en concentration ($I_p=I_{BF}$) évaluées en référence au bruit de fond minimum théorique et mesuré sur le prototype

	10-100 nm		100-820 nm	
\bar{q}_p	1		13	
Bruit de fond (fA)	théorique	mesuré	théorique	mesuré
		10	1000	10
N_p^{min} (détectable (cm^{-3}))	$1,2 \cdot 10^2$	$1,2 \cdot 10^4$	10^1	20
I_p (pour $N_p=10^3 \text{ cm}^{-3}$) (fA)	80		1040	

En considérant le bruit de fond minimum théorique, la concentration minimale détectable est de l'ordre de 100 cm^{-3} pour le premier plateau et de 10 pour le second. Ces valeurs sont proches de celles calculées à partir des mesures du courant de particules chargées

(cf.VI.2.2.2). La limite de détection réelle sur le premier plateau non optimisé est d'environ 10^4 cm^{-3} ($>10^3 \text{ cm}^{-3}$). Le courant I_p mesuré pour la concentration minimale de l'étude (10^3 cm^{-3}) est donc de 10 à 100 fois supérieures au bruit de fond.

Cela permet de répondre à l'objectif de l'étude en termes de limite de détection. Toutefois, ces limites de détection sont sous-estimées notamment sur le premier plateau. En effet, les granulométries d'aérosol atmosphérique montrent que dans cette gamme de diamètres, la concentration décroît avec le diamètre, si bien que la charge moyenne d'environ 1 charge par particule ($<100 \text{ nm}$) est sur-estimée pour le premier plateau.

VI.3.2.2. Mesure à 10 Hz : temps de réponse $< 100 \text{ ms}$

Le temps de réponse est caractérisé en utilisant deux électrovannes rapides selon le setup détaillé au §III.7. Le temps de réponse de l'électromètre a tout d'abord été testé avec des ions en air propre (i.e. sans tension sur le piège à ions) le temps de réponse est de l'ordre de 90 ms. L'électromètre permet bien de mesurer à 10 Hz.

La mesure du temps de réponse est réalisée avec des concentrations ($\approx 10^6 \text{ cm}^{-3}$) supérieures au maximum à étudier afin de sortir du bruit. Le pouvoir de séparation, qui dépend de la fonction de transfert du séparateur (non mesurée ici), de la relation mobilité-diamètre et de la largeur des distributions de charge pour chaque taille, est caractérisé en sortie de chargeur sur un aérosol monodispersé initialement neutralisé. Il faut noter qu'en augmentant la fréquence de mesure, les variations de débit induites par la pompe à palettes sont visibles, contrairement aux mesures précédentes qui étaient moyennées sur quelques secondes.

Pour les mesures avec aérosols, le système d'électrovanne a été installé, dans un premier temps, sur la voie aérosol avant le système de dilution. Néanmoins, le volume de ce diluteur augmente le temps de transit de 300 ms et donc le temps de réponse de l'instrument, d'autant plus qu'il présente des volumes morts. La dilution a donc été réalisée par simple addition de 28 L.min^{-1} d'air propre au 2 L.min^{-1} d'aérosol débités au maximum par l'électrovanne. Par ailleurs, le temps de réponse descendant est toujours plus grand, d'environ 15%, que le temps de mesure ascendant ce qui est probablement lié à la purge des volumes morts dans les lignes d'injection d'aérosols et dans le chargeur. Par la suite, seul le temps de montée est caractérisé. De multiples créneaux sont réalisés et une valeur moyenne du temps de réponse est déterminée (cf. Figure 115). Le temps de réponse mesuré sans diluteur avec un débit dans l'ECF de 10 L.min^{-1} est de $110 \text{ ms} \pm 2 \text{ ms}$.

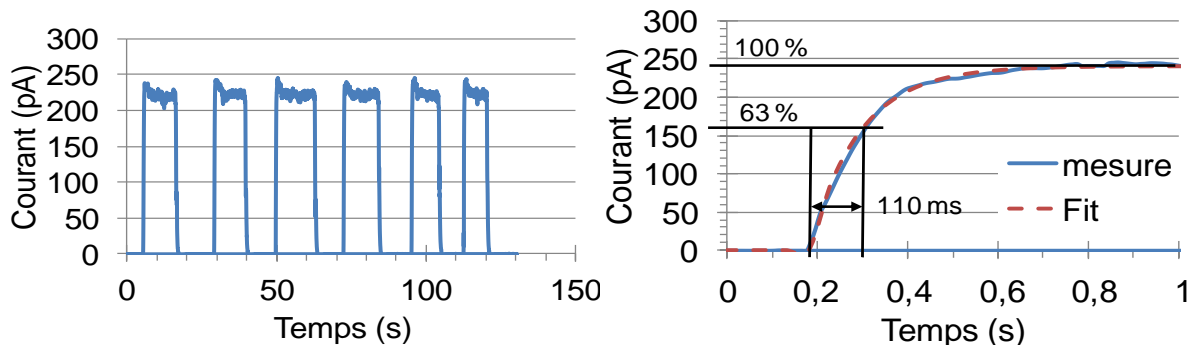


Figure 115: évolution du courant de particules chargées en réponse à des créneaux de concentration

Pour illustrer l'influence du temps de transit total contrôlé par les différents volumes et par le débit de prélèvement de l'ECF, trois types de mesures ont été effectuées : (1) avec le diluteur puis (2) sans diluteur avec un débit dans l'ECF de $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ (3) et enfin sans diluteur avec un débit dans l'ECF de $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Une représentation des réponses aux créneaux de concentrations pour ces différentes conditions de mesure est donnée à titre indicatif par la Figure 116a.

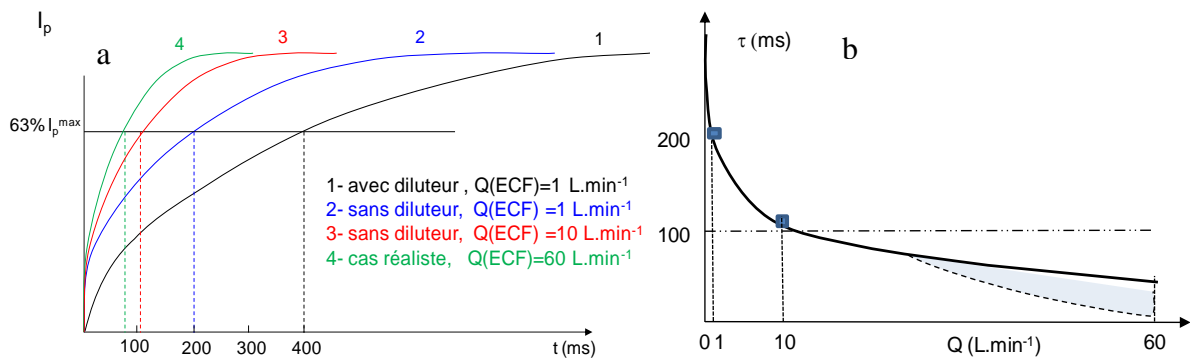


Figure 116 : (a) évolution temporelle du courant de particules mesuré à l'ECF sur le deuxième plateau selon les conditions expérimentales et (b) Evolution du temps de réponse de l'instrument pour différents débits de sortie du séparateur prélevés dans l'ECF

Dans le premier cas, le temps de réponse est de 400 ms et descend à 200 ms en supprimant le diluteur puis à 110 ms quand le débit de mesure passe de 1 à $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Dans cette dernière condition la fréquence de mesure est alors égale à 9,1 Hz. Cependant, il est possible d'augmenter cette fréquence en supprimant les volumes morts, notamment celui de l'ECF et en limitant le temps de transit de l'aérosol en prélevant la totalité du débit d'aérosol dans l'ECF ($60 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$).

L'instrument de mesure préliminaire testé ici permet donc déjà de répondre aux objectifs de l'étude en termes de fréquence de mesure à 10 Hz et devrait même permettre d'atteindre des fréquences de mesures plus élevées en prélevant la totalité du débit d'aérosol (Figure 116.b).

VI.3.2.3. Pouvoir de séparation

La double contrainte qui a permis de dimensionner le séparateur porte sur le diamètre de coupure de 100 nm en 50 ms de temps de transit. Le pouvoir de séparation est testé dans deux conditions de charge (i.e. pour un courant de décharge de -10 et -110 μA) avec un champ électrique de $1,7 \cdot 10^6 \text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$ sans décharge pour 8000 V appliqué sur l'électrode externe du séparateur.

L'inversion de données est basée sur les mesures des courants de particules chargées en sortie de séparateur (plateaux 2) avec puis sans collection (ESP on puis off). L'efficacité de collection sur le premier plateau est caractérisée en termes de pourcentage du courant collecté et non en termes de pourcentage de la concentration d'aérosol par mesure des courants. Il faut souligner que cette efficacité est cohérente avec celle calculée à partir de la mesure du courant sur le premier plateau (pour des particules de 330 nm, chargées 12 fois en moyenne et pour une concentration de 10^6 cm^{-3} , permettant de dépasser le bruit de fond actuel d'1 pA).

La Figure 117 représente l'efficacité de collection en pourcentage du courant de particules chargées selon le diamètre des particules pour les deux courants de décharge -10 et -110 μA , pour des diamètres de 50 à 820 nm.

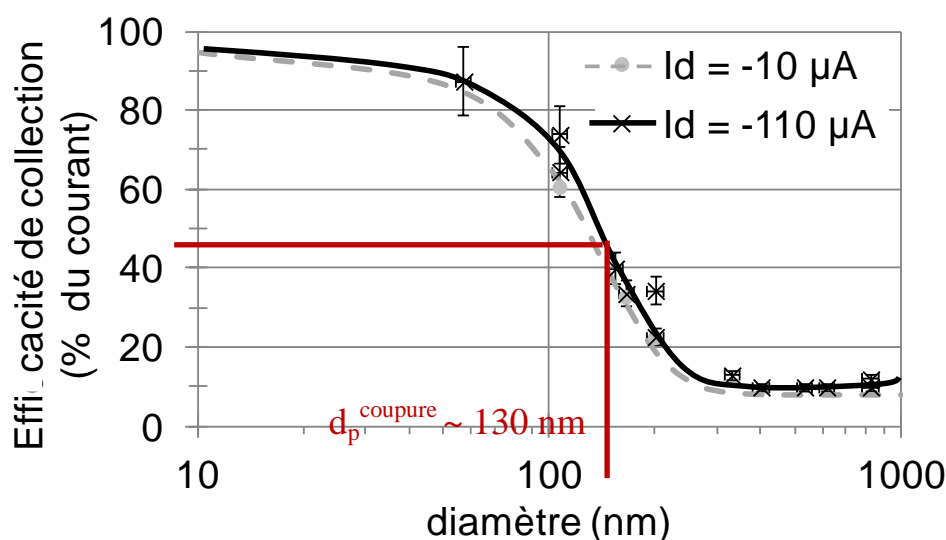


Figure 117: efficacité de collection du premier plateau

Quel que soit le courant de décharge, les particules les plus fines sont plus mobiles et mieux collectées (>85% du courant des particules de 54 nm, contre 23 % pour les particules de 200 nm). Le diamètre de coupure est d'environ 130 nm contre 100 nm calculé plus haut dans le cas d'un écoulement laminaire dans le séparateur. Ce décalage est probablement dû aux turbulences induites par l'expansion centripète du flux (vers le centre) à l'entrée du séparateur

à partir de fente annulaire d'injection périphérique. Cela est confirmé par la collection d'une fraction des particules de diamètre supérieur à 300 nm, qui ne devraient pas être collectées .

Le pouvoir de séparation en nombre est meilleur qu'en courant. En effet, l'efficacité de collection sur le plateau 1 exprimée en fraction de la concentration numérique est plus faible que celle en fraction du courant représentée sur la Figure 117, au-delà du diamètre de coupure, et inversement (plus forte en deçà du diamètre de coupure). En effet, les particules les mieux collectées sont les plus mobiles et donc les plus chargées ; elles induisent donc un courant plus important que les particules non collectées. Les courants sur les plateaux 1 et 2 peuvent s'écrire :

$$I_1 = \int_{d_p^{\min}}^{d_p^{\max}} \left[\sum_i i \cdot q_e \cdot N_p(d_p) \cdot f_i(d_p) \cdot \eta_i^1(d_p) \right] \cdot dd_p$$

$$I_2 \text{ idem en remplaçant } \eta_i^1 \text{ par } \eta_i^2 = (1 - \eta_i^1)$$

avec i , l'indice correspondant au nombre de charge, f_i la fraction chargée i fois et η_i^1 l'efficacité de collection en concentration sur le premier plateau. Par exemple pour des particules de 600 nm, l'efficacité de collection en courant est de 38% et les fractions $f_i(600 \text{ nm})$ peuvent être évaluées grâce à la Figure 111 et les efficacités η_i^1 estimées à partir de l'efficacité théorique de collection du séparateur définie en % de la concentration numérique.

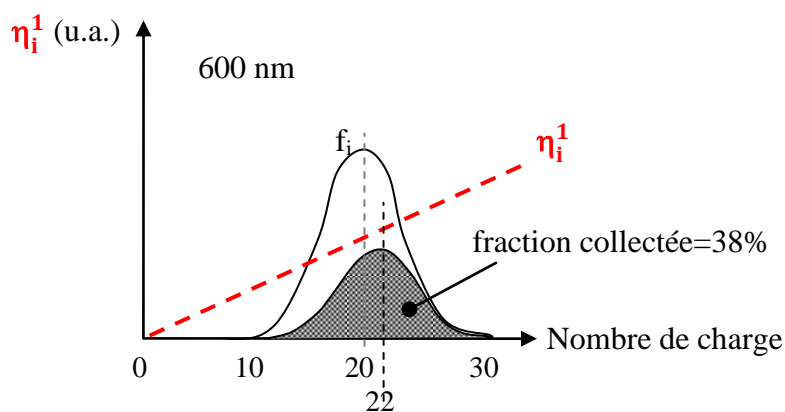


Figure 118: distribution de charge des particules de 600 nm

Ainsi, il est possible d'estimer l'efficacité de collection en nombre de l'ordre de 30%, en raison du décalage de 20 % de la charge moyenne sur les modes des distributions de charge totale et de la distribution de charge collectée, inférieure au 38 % d'efficacité en courant.

Si la majorité du courant de particules fines chargées est bien collectée en deçà de 130 nm, le pouvoir de séparation de l'instrument est meilleure à -10 qu'à -110 μA (cf. Figure 117). En effet, la même allure de courbe est obtenue, mais le diamètre de coupure est plus faible (~ 120 nm à -10 μA contre 130 nm à -110 μA) et les particules sont moins bien collectées. Si la réduction de la collection des particules plus grosses que le diamètre de coupure sur le premier plateau facilite l'inversion des données du premier plateau malgré une moins bonne collection des particules plus fines. En effet, la collection de grosses particules fortement chargées induit une erreur relative plus importante sur le premier plateau, que la collection de particules moins chargées sur le second plateau.

Plusieurs options d'amélioration sont envisagées pour améliorer la séparation électrostatique.

VI.4. Conclusions et améliorations

Ce travail a abouti à un chargeur d'aérosol compatible avec les contraintes métrologiques imposées par le cahier des charges et a démontré la faisabilité du principe de l'instrument.

L'instrument de mesure préliminaire testé ici permet déjà d'atteindre les objectifs visés en termes de limite de détection (jusqu'à 10 fois plus importante que le bruit de fond à condition réduire le bruit de mesure sur le premier plateau de mesure en blindant le système et l'alimentation haute tension) et de la fréquence de mesure au delà 10 Hz en prélevant la totalité du débit d'aérosol.

Le point faible de l'instrument est donc le pouvoir de séparation qui est lié d'une part au régime d'écoulement turbulent dans le séparateur (cf. §VI.3.1), à la relation charge moyenne-diamètre dont la pente est faible (cf. §VI.2.1.1), et aux écarts de conditions de charges (cf. §VI.2.2.3.b). Plusieurs options sont envisageables pour l'améliorer :

Avec le même chargeur, l'injection d'un débit d'air propre dans le séparateur (sheath air) pour laminariser le flux permettrait d'améliorer la séparation électrostatique. Il est également possible d'augmenter le temps de transit dans le séparateur en réduisant le temps de charge : soit en conservant les mêmes niveaux de charges (grâce au champ créé par le piège à ions cf § V.5.4.1) et en augmentant le temps de dérive pour améliorer la séparation électrostatique, soit en diminuant les niveaux de charge et les écarts de conditions de charge $\Delta N_{i,t}$.

Les chargeurs avec extracteurs sandwich permettent d'augmenter la pente de la relation charge-diamètre (cf. §V.5.5.1) et le pouvoir de résolution qui en dépend. Les chargeurs de type fil-fente (non présentés dans cette étude) permettent probablement de limiter les écarts de

conditions de charge $\Delta N_i.t$. avec toutefois des produits $N_i.t$ certainement plus faibles qui réduisent la sensibilité et la limite de détection.

Par ailleurs, si l'amélioration du pouvoir de séparation n'était pas suffisante, l'utilisation de plusieurs chargeurs en parallèle est également une option envisageable. Avec plusieurs chargeurs fonctionnant dans les mêmes conditions de charge mais sur des gammes de tailles différentes (impacteurs d'entrée différents), soit en modifiant les conditions de charge (c'est-à-dire le courant d'ion ou les temps de charge).

Enfin, aux vues de l'efficacité de ce chargeur et des limites de détection inférieures à 10^3 cm^{-3} , il est aussi possible d'augmenter le nombre de plateaux.

Le chargeur développé ici est donc intéressant pour la charge et donc la caractérisation d'aérosol car les pertes sont négligeables en raison du temps de charge inférieur à 50 ms, notamment pour les fines particules du fait de la charge partielle en deçà de 30 nm.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Ce travail apporte de nouveaux éléments sur le confinement électro-hydrodynamique (EHD) des ions et sur la charge d'aérosols par diffusion d'ions unipolaires dans des densités d'ions spatialement hétérogènes.

Dans le but de développer un instrument de mesure de l'évolution temporelle de la concentration d'aérosol atmosphérique entre 10^3 et 10^5 cm^{-3} , de particules de 10 à 1000 nm, sur au moins deux gammes de diamètre avec une séparation autour de 100 nm, fonctionnant à 10 Hz, nous avons traduit le cahier des charges en contraintes métrologiques, puis en critères à remplir pour le chargeur d'aérosol, objet de cette étude.

Pour atteindre les fréquences de mesure de 10 Hz, nous avons choisi de limiter le temps de transit des aérosols dans le chargeur à 50 ms (100 ms de transit total dans l'instrument de mesure incluant le prélèvement et la séparation électrostatique). En effet, la granulométrie et la concentration d'un aérosol évoluent pendant le transport dans le système. Cela impose donc de réduire le temps de transit de l'aérosol dans l'instrument à des temps du même ordre de grandeur que le temps de réponse souhaité. La méthode retenue repose sur la charge de l'aérosol, la séparation électrostatique des particules par gammes de mobilités électriques et la mesure des courants de particules chargées. Les aérosols sont chargés par collection d'ions en post-décharge couronne : les ions sont soufflés vers la post-décharge via un orifice percé dans le plan de masse (extracteur), puis mélangés aux aérosols.

La stratégie d'étude est basée sur les cinq principaux critères que doit remplir le chargeur : la stabilité temporelle, la reproductibilité des niveaux de charge des particules, le temps de transit de l'aérosol, le courant de particules chargées par gamme de taille et une relation mobilité des particules chargées selon leur diamètre qui soit bijective.

Pour caractériser les chargeurs, nous avons développé ou adapté différents protocoles de production d'aérosols monodispersés (taille contrôlée) et de mesures, aux conditions d'étude. Nous avons ainsi caractérisé les profils de densité de courant ionique dans l'espace inter-électrodes, les flux d'ions en post-décharge, la charge moyenne par particule, les pertes d'aérosol et enfin les distributions de charge. Ces protocoles sont maintenant viables et disponibles au laboratoire.

La charge moyenne par particule dépend au premier ordre, du diamètre de l'aérosol et du produit $N_i.t$. Le but était d'atteindre un produit $N_i.t$ de l'ordre de quelques 10^6 s.cm^{-3} . Nous avons réussi à atteindre un produit $N_i.t$ de 10^7 s.cm^{-3} malgré le temps de charge de 50 ms. Pour atteindre de tels produits $N_i.t$, une densité moyenne d'ions de l'ordre de 10^8 cm^{-3} est requise.

Pour de telles densités d'ions unipolaires, nous avons confirmé que les répulsions électrostatiques conduisent à la décroissance de plusieurs ordres de grandeur de la densité d'ions dans la zone de charge en post-décharge (3 ordres de grandeurs en 50 ms).

L'originalité de cette étude repose donc sur l'hétérogénéité des profils de densités d'ions unipolaires, i.e. sur l'hétérogénéité des conditions de charge.

Nous avons défini la géométrie et les conditions de fonctionnement de la décharge négative qui garantissent un profil de densité d'ions dans le chargeur stationnaire dans des plages d'au moins 2 kV en régime de Trichel et Couronne, avec une tension de fonctionnement maximale de 20 kV. Pour cela, la distance inter-électrodes est fixée à $d_{gap}=13$ mm pour un rayon de courbure de la pointe de $R_c=80$ μm .

Pour assurer une densité d'ions en entrée du chargeur supérieure à 10^9 cm^{-3} , nécessaire pour atteindre la densité moyenne de l'ordre de 10^8 cm^{-3} et les produits $N_i.t$ requis (quelques 10^6 s.cm^{-3}), la source d'ions a été optimisée par une étude paramétrique. Nous avons ainsi identifié les variables qui contrôlent le transport d'ions dans la décharge, dans l'extracteur et en sortie de l'extracteur. Nous avons donc confirmé que le transport des ions est bien contrôlé par une compétition électro-hydrodynamique (EHD).

Nous avons montré que le flux de gaz n'affecte pas la caractéristique potentiométrique de la décharge, car les vitesses de gaz au niveau de la pointe sont négligeables devant celles des ions. Toutefois, nous avons mis en évidence que le flux de gaz affecte les profils mesurés de densité d'ions au niveau du plan de masse par comparaison avec la loi de Warburg établie et confirmée ici sans flux gazeux. La purge des ions dans l'extracteur par le flux de gaz (effet hydrodynamique) engendre alors le confinement des ions vers le trou (effet électrostatique).

Cet effet permet d'augmenter le courant d'ions entrant dans l'extracteur et donc le courant entrant dans le chargeur. Une extrapolation de ces profils sur la face d'entrée de l'extracteur a alors permis d'estimer le courant entrant dans l'extracteur.

Par analogie au formalisme de Whitby qui donne l'expansion d'un nuage d'ions unipolaires sous l'effet des répulsions électrostatiques, nous avons démontré que le transport EHD des ions dans l'extracteur et en entrée du chargeur, dépend au premier ordre du rapport du temps de transit sur le temps de dérive des ions (efficacité d'extraction ionique = $f(t_{transit}/t_{dérive} \sim N_e.D/Q_{ions})$, avec $N_e = I_{extracteur}/e Q_{ions}$, la densité d'ions à l'entrée de l'extracteur). Le temps de transit des ions est contrôlé par la vitesse du gaz et le temps de dérive des ions par la densité d'ions à l'entrée de l'extracteur et la géométrie de l'extracteur. Nous avons ainsi pu dimensionner deux types d'extracteur permettant d'atteindre des densités d'ions maximales en entrée du chargeur : l'extracteur "sandwich" -métal-isolant métal- qui permet de mesurer la

totalité du courant d'ions entrant dans le chargeur et l'extracteur métallique sans isolant qui permet de s'affranchir du champ de surface induit par la polarisation de l'isolant.

L'approche retenue est basée sur l'injection d'aérosols monodispersés utilisés comme "sonde" pour évaluer le produit $N_i.t$ à partir du nombre moyen de charge acquis par particule et de la loi charge de Fuchs dans le régime de transition.

Dans des densités d'ions hétérogènes, le produit $N_i.t$ et donc le nombre de charge moyen par particule, dépend du temps de charge, de la trajectoire de l'aérosol et des profils de densité d'ions c'est-à-dire de la distribution spatiale des ions dans le chargeur. Pour une source d'ions donnée (géométrie, Q_{ions} , N_i°), ces variables dépendent du mélange ions-aérosol. En effet, le profil de densité d'ions dans le chargeur dépend certes de la densité d'ions initiale en entrée du chargeur mais aussi du champ électrostatique et de la vitesse du gaz en tout point du chargeur.

Une étude préliminaire dans un mélange non-axisymétrique a montré que le niveau de charge de l'aérosol évolue avec la concentration. Cet effet est probablement lié à la charge d'espace de l'aérosol qui repousse les ions. Ainsi, deux configurations de mélange ions-aérosols axisymétriques, face-à-face et concentrique, ont été testées avec les extracteurs métal isolant-métal, qui permettent de séparer le courant de décharge collecté sur le plan troué dans l'espace inter-électrodes en amont de l'extracteur, du courant d'ions collectés sur la face aval de l'extracteur. Nous avons illustré les effets de ces trois variables sur le nombre moyen de charge par particule relatif au produit $N_i.t$:

- L'aérosol se charge essentiellement dans les premières millisecondes. Ceci est dû à l'hétérogénéité de la densité d'ions dans le chargeur qui décroît de plus de trois ordres de grandeur. Par conséquent, le temps de charge peut être réduit à 30 ms sans modifier de plus de 5% la charge finale, quelle que soit la configuration de mélange.
- Le profil de densité d'ions dans le chargeur a pu être contrôlé par confinement électrostatique des ions induit par le champ de polarisation de l'isolant de l'extracteur métal-isolant- métal avec ou sans le champ de Laplace créé par le piège à ions.
- L'effet de la trajectoire sur le nombre de charge moyen par particule a été mis en évidence pour des aérosols de tailles différentes, contrairement à ce qui est observé dans les chargeurs où la densité d'ions est homogène. Dans notre cas, où la densité d'ions est hétérogène, un écart de plus de 30% en faveur des plus fines est observé sur les produits $N_i.t$ vus par des particules de 820 nm et 460 nm. Cela peut s'expliquer par le rétrocontrôle de la trajectoire des particules par la dynamique de charge. En effet, une fois chargée après injection des particules vers le centre du panache ionique où les densités sont les plus élevées, les particules sont

expulsées en périphérie du panache d'ions par répulsion électrostatique vers des densités de plus en plus faibles. Ainsi, la trajectoire des particules est modifiée d'autant plus tôt après injection dans le même profil de densité d'ions que la particule se charge vite. Les grosses qui se chargent plus rapidement, sont donc expulsées plus tôt après avoir atteints des densités d'ions plus faibles. Les grosses atteignent alors et transitent donc, une fois chargées dans des densités d'ions plus faibles que les fines. Cet effet a été observé dans les deux configurations de mélange. La pente de la relation mobilité-diamètre dans ce cas est donc plus grande ce qui est favorable à un meilleur pouvoir de séparation mobilimétrique.

Nous avons ainsi démontré que l'injection d'aérosol dans la plus forte densité n'est pas forcément favorable à la charge. En effet, nous avons mis en évidence l'effet néfaste du champ de surface induit par polarisation de l'isolant des extracteurs sandwich, tant en termes de $N_{i,t}$ vu par les particules qu'en termes de pertes d'aérosol chargés.

Pour l'application, nous avons donc retenu les chargeurs à extracteurs métalliques afin d'augmenter la sensibilité du système de mesure. La sensibilité (i.e. le courant de particules chargées par gamme de taille) dépend des pertes d'aérosols, du niveau de charge des particules et du débit d'aérosol. En effet, ce chargeur à extracteur métallique, charge mieux les particules avec des pertes < 10%, malgré un courant d'ions entrant dans le chargeur plus faible qu'avec un extracteur métal-isolant-métal.

En outre, le mélange concentrique ($D_{inj}=5$ mm et $e_{inj}=3$ mm) a été retenu pour étudier la charge avec une perte de charge plus faible et constante contrairement à la configuration de mélange face-à-face, selon les diamètres d'aérosols monodispersés de 10 à 820 nm, avec extracteur métallique ($D=2,1$ mm). Nous avons montré que :

- le nombre moyen de charge par particule est plus élevé ($N_{i,t}$ de l'ordre de 10^7 s.cm⁻³ sur toute la gamme de taille avec l'extracteur métallique contre 1 à 6.10^6 s.cm⁻³ avec l'extracteur sandwich). En outre, cela diminue le diamètre minimum en deçà duquel seule une fraction des particules est chargée (limite de charge partielle) à 40 nm contre 100 nm à 10^6 s.cm⁻³. Ce critère est d'autant plus important que pour l'aérosol atmosphérique, la concentration de ces particules de taille inférieure à 100 nm représente plus de 90% de la concentration totale.
- les pertes d'aérosol sont inférieures à 10% sur toute la gamme de taille,
- les relations charge et mobilité moyennes selon le diamètre sont bien bijectives, pour deux courants de décharge, i.e pour deux profils de densité d'ions dans le chargeur,
- la relation entre le courant d'aérosol chargé monodispersé et la concentration est linéaire,
- les distributions de charge mesurées, démontrent que toutes les particules de même taille ne voient pas le même $N_{i,t}$. Outre le caractère statistique de la diffusion ionique qui conduit à des

niveaux de charge différents, d'où la notion de distribution de charge pour des particules de même diamètre, cet écart de $N_i.t$ vu par des particules de diamètres identiques ($\Delta N_i.t$) conduit à un élargissement des distributions de charges obtenues dans les chargeurs où les densités d'ions sont homogène. Cela est d'autant plus notable que les densités d'ions unipolaires sont élevées et que les profils de densités sont donc plus hétérogènes. Cet écart de produit $N_i.t$ relatif à l'hétérogénéité des densités d'ions est ici accentué par la différence de position des particules sur la section d'injection.

Le séparateur électrostatique a été dimensionné à partir de la relation mobilité-diamètre mesurée en aval du chargeur pour définir la limite de détection du système en termes de concentration minimale mesurable, valider la mesure de concentration à 10 Hz et définir la résolution en diamètre dans le système complet. Ce séparateur est un prototype de test pour identifier les points critiques à améliorer.

Le système de mesure développé dans le cadre de cette thèse comprend le chargeur, le séparateur et la mesure du courant. Il a été caractérisé en termes de limite de détection en concentration, de fréquence de mesure et de pouvoir de séparation. La limite de détection en concentration et la fréquence de mesure répondent aux objectifs de l'étude. En effet, la limite de détection est d'un ordre de grandeur plus faible que celle requise (100 cm^{-3}) et la fréquence de mesure est de l'ordre de 10 Hz. Cependant, le pouvoir de séparation de l'instrument reste faible. Ce pouvoir de séparation est affecté par l'élargissement de la distribution de charge dans le chargeur développé mais aussi par les turbulences dans le séparateur. La faisabilité du système de mesure a donc été démontrée sous réserve d'améliorer le pouvoir de séparation. Pour cela, différentes solutions peuvent être envisagées. En effet, aux vues de la limite de détection atteinte, il est possible de diminuer la charge de l'aérosol pour resserrer la distribution de charge. Par ailleurs, un débit de gaz propre (sheath air) injecté dans le séparateur permettrait aussi de limiter les turbulences et donc d'augmenter le pouvoir de séparation.

Aux vues de l'efficacité de charge de ce chargeur (extracteur métallique avec mélange concentrique) qui conduit à des courants par plateau très supérieurs au bruit de fond du système et à la limite de détection de l'électromètre, il est possible d'augmenter le nombre de plateaux mobilimétrique/gamme de tailles et de réduire le temps de charge en deçà de 30 ms pour augmenter le temps dédié à la séparation des particules chargées. En outre, il est possible d'utiliser l'autre chargeur fil-fente qui limite l'élargissement de la distribution de charge, induit par l'écart de $N_i.t$ ($\Delta N_i.t$) vu par des particules de diamètres identiques au profit d'un meilleur pouvoir de séparation. En effet, malgré des densités d'ions et des produits $N_i.t$ plus

faibles (d'environ 10^6 s.cm⁻³), le profil de densité d'ions est plus homogène dans cette géométrie fil-fente qu'avec les mélange axi-symétrique.

Dans un deuxième temps, un algorithme d'inversion de données devrait être développé pour évaluer les concentrations par gammes de taille à partir des mesures de courants de particules chargées. Il convient enfin de souligner l'intérêt de ce chargeur pour la détection électrique, mais surtout pour l'électro-filtration et l'électro-processing (coagulation, dépôts focalisé ou homogène) des aérosols ultra-fins en deçà de 100 nm, d'autant plus que les pertes d'aérosol sont négligeables vu le temps de charge court et l'abaissement de la limite de charge partielle.

REFERENCES

- [ADA-85] : M. Adachi, Y.Kousaka, , and K.Okuyama, "Unipolar and Bipolar Diffusion Charging of Ultrafine Aerosol Particles", *J. Aerosol Sci.* 16:109–123,1985
- [ALO-06]: Alonso, M., Martin,F.J., Aguacil,F.J. The measurement of chargingefficiencies and losses of aerosol nanoparticles in a corona charger .*Journal of Electrostatics*, 64, 203-214, 2006
- [ALO-09]: Alonso, Met al., first DMA measurements of air ion produced by radioactive source and corona,*Aerosol and air quality*, 9: 453-457, 2009
- [ARE-25]: Arendt, P. & Kallman, H. "The mechanism of charging of mist particles". *Zeitschrift für Physik*,35, 421–441 , 1925
- [BIS-04]₁: Biskos, G. "Theoretical and experimental investigation of differential mobility spectrometer" PhD Thesis, University of Cambridge.
- [BIS-04]₂: Biskos, G., Mastorakos, E., and Collings, N., "Monte-Carlo simulation of unipolar diffusion charging for spherical and non-spherical particles", PhD Thesis, University of Cambridge.
- [BIS-05]₁: Biskos, G., Reavell, K., & Collings, N. "Description and theoretical analysis of a differential mobility spectrometer". *Aerosol Science and Technology*, 39, 527–541, 2005
- [BIS-05]₂: Biskos, G., Reavell, K., & Collings, N. Electrostatic characterization of corona-wire aerosol chargers. *Journal of Electrostatics*, 63, 69–82, 2005
- [BOI-70] : Boisdron, K. & Brock, J. R. "On the stochastic nature of the acquisition of electrical charge and radioactivity by aerosol particles". *Atmospheric Environment*, 4, 35–50, 1970
- [BOR-09]: Borra, J.P. "Charging of aerosol and nucleation in atmospheric pressure electrical discharges *Plasma Phys*". *Control. Fusion* 50 124036-124045, 2009
- [BRI-49] ; Bricard, J. L'equilibre ionique de la basse atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 54, 39–52, 1949
- [BUS-94] : Büscher, P., Schmidt-Ott, A., & Wiedensohler, A. "Performance of a unipolar 'square wave' diffusion charger with variable Nt-product". *Journal of Aerosol Science*, 25, 651–663, 1994
- [BUZ-01] : Buzorius G., "Cut-off sizes and time constants of the CPC TSI 3010 operating at 1-3 lpm flow rates". *Aerosol Sci. Tech.* **35**, 577-585, 2001
- [BOU-98] : Boulaud D., Renoux A., Les aérosols : physique et métrologie, Lavoisier Tech.& Doc. ed.,Paris, 1998

- [CHE-97]: Cheng, S. H., Ranade, M. B., Gentry, J. W. "Experimental design of high volume electrostatic charger". *Journal of Aerosol Science*, 26, 433 – 446, 1997
- [DAM-09]: Damay P.E., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hebert D., Talbaut M. & Irvine M., "Size-resolved eddy covariance measurements of fine particle vertical fluxes". *Journal of Aerosol Science*, **40**, 1050-1058, 2009.
- [DAM-10]: Damay P.E. Détermination expérimentale de la vitesse de dépôt sec des aérosols submicroniques en milieu naturel : influence de la granulométrie, des paramètres micrométéorologiques et du couvert. Thèse de doctorat de l'Université de Rouen, 2010
- [DUP-74]: Dupuy J. et Goldman A., "Communication aux journées sur les interactions decharge-surface", 1974.
- [FLA-98]: Flagan R. C., "History of electrical aerosol measurements". *Aerosol Science and Technology*, 28, 301 -380, 1998
- [FRI-05]: Fridman A., Chirokov A. et Gutsol A. "Non-thermal atmospheric pressure Discharges" *J. Phys. D: Appl. Phys.* 38 R1–R24, 2005
- [FUC-63]: Fuchs, N. A. "On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere". *Geofisica Pura e Applicata*, 56, 185-193, 1963
- [FUC-47]: Fuchs, N. A. On the charging of particles in atmospheric aerosols. 11, 341–348, 1947.
- [GEN-67] : Gentry J., et Brock J. R., "Unipolar Diffusion Charging of Small Aerosol Particles", *J. Chem. Phys.* 47:64–69, 1967
- [GEN-72] : Gentry J. W., "Charging of Aerosol by Unipolar Diffusion of Ions", *J. Aerosol Sci.*, 3:65–76, 1972
- [GEN-05] : Gensdarmes F. et Géléoc M. "Real time measurement of fugitive nanoparticle emission". *Int. Symp. Nanotechnology and Occupational Health*, Minneapolis, 2005
- [GOL-78]: Goldman M. et Goldman A., "Electrical discharges in gases", Chapter 4, Volume 1, 1978
- [GOL-91]: GOLDMAN A. & GOLDMAN M., "Les plasmas froids à pression atmosphérique" *Les Plasmas dans l'industrie*, Coll. DOPEE, Ed. Electra, Paris, Chap.1.2.2, pp. 57, 1991
- [GRA-87]: Gravendeel B., de Hoog F.J. "Clustered negative ions in atmospheric negative corona discharges in the Trichel regime". *J. phys.B.* **20** (1987) 6337-6361, 1987
- [GRA-01]: Graskow, B. R., "Design and development of fast aerosol spectrometer", Ph.D.Thesis, 2001, University of Cambridge, UK

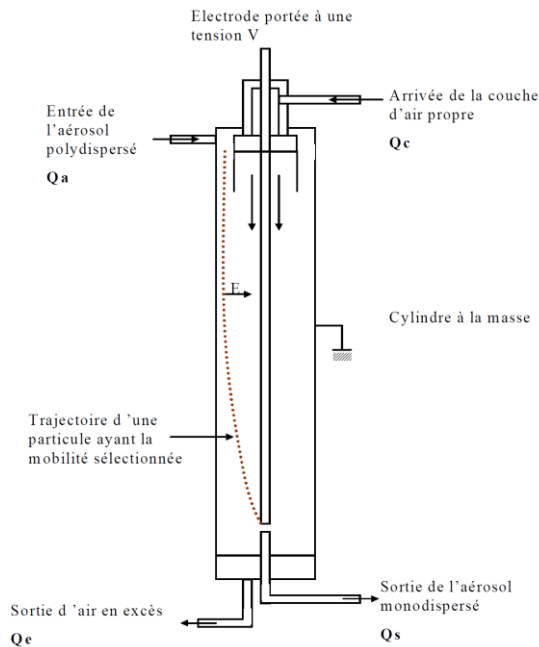
- [HAN-2008]: Han B., Kim H., Kim Y., Sioutas C., "Unipolar Charging of Fine and Ultra-Fine Particles Using Carbon Fiber Ionizers", *Aerosol Science and Technology*, 42:793–800, 2008
- [HAR-1984]: G.HARTMANN., " Theoretical Evaluation of Peek’s Law ", *IEEE Transactions on industry applications*, Vol IA-20, n°6, November/December, 1984
- [HEL-94] : Held, B, *Physique des plasmas froids* , Masson, Paris, 1994
- [HEL-06] : Held A., et Klem O. "Direct measurement of turbulent particle exchange with a twin CPC eddy covariance system". *Atmospheric Environment* **40**, S92-S102, 2006
- [HEL-07] : Held A., Niesser R., Bosveld F., Wrzesinky T. et Klemm O. "evaluation and application of an electrical low pressure impactor in disjunct eddy covariance aerosol flux measurements". *Aerosol Sci. Technol.* **41**, 510-519, 2007
- [HER-03]: Hernandez-Sierra, A., Alguacil, F. J., Alonso, M. "Unipolar charging of nanometer aerosol particles in a corona ionizer". *Aerosol Science*, 34, 733–745, 2003
- [HER-08]: Hering S., Stolzenburg M.R., Quant F., Oberreit D.R., Keady P.B. "A laminar-flow water based condensation particle counter (WCPC)". *Aerosol Sci. Tech.* **39**, 659-672, 2008
- [HEW-57]: Hewitt G.S, “The Charging of Small Particles for Electrostatic Precipitation”. *AIEE Trans.* 76: 300–306, 1957.
- [HIN- 82]: HINDS W.C., *Aerosol technology - Properties, behavior, and measurement of airborne particles*, Wiley, New York, 1982
- [HOL-74] : HOLLAHAN J.R., BELL A.T., “Techniques and Applications of Plasma Chemistry”, Wiley-Interscience, New York, 1974
- [INT-09]: Intra, P., Tippayawong, N. "Measurements of ion current from a corona needle charger using a Faraday cup electrometer". *Chiang Mai Journal of Science*, 36, 110-119. (2009)
- [INT-09]: Intra, P., Tippayawong, N. "Progress in unipolar corona discharger designs for airborne particle charging: A literature review". *Journal of Electrostatics*, 67, 605–615, 2009
- [INT-11]: Intra, P., Tippayawong, N."An Overview of Unipolar Charger Developments for Nanoparticle Charging", *Aerosol and Air Quality Research*, 11: 187–209, 2011
- [JON-97]: J. E. Jones "A theoretical explanation of the laws of Warburg and Sigmond". *Proc. R. Soc. Lond. A* 453 (1997) 1033-1052, 1997
- [KNU-75]: Knutson, E.O.et Whitby, K.T., "Aerosol classification by electric mobility: apparatus theory, and applications ", *Journal of Aerosol Science*, 6,443-451, 1975

- [KUF-84]: Kuffel E., Zaengl W.S., High voltage engineering, Butterworth Heinemann, Great Britain, 1984
- [KRU-01]: Kruis, F. E., Fissan, H. "Nanoparticle charging in a twin Hewitt charger". *Journal of Nanoparticle Research*, 3, 39–50, 2001
- [LAC-03]: Lackowski, M., Jaworek, A., & Krupa, A. Current-voltage characteristics of alternating electric field charger. *Journal of Electrostatics*, 58, 77–89, 2003
- [LAM-74]: Lama, W. L., Gallo, C. F., *J. App. Phys.* 45,103, 1974
- [LI-2011]: Li, L., Chen D., "Performance study of a DC-corona-based particle charger for charge conditioning", *Journal of aerosol science*, 42 (2011) 87–99–134, 2010
- [LIU-67]: Liu B. Y. H., Whitby K. T., Yu, H. H. S. "On the theory of charging of aerosol particles by unipolar ions in the absence of an applied electrical field". *Journal of Colloid and Interface Science*, 23, 367–378, 1967
- [LIU-67]: Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H. "On Unipolar Diffusion charging of aerosols in the continuum regime". *Journal of Colloid and Interface Science*, 58, 142–149, 1977
- [LIU-78]: Liu, B. Y. H. & Kapadia, A. "Combined field and diffusion charging of aerosol particles in the continuum regime". *Journal of Aerosol Science*, 9, 227–242, 1978
- [LOE-65] : Loeb L.B., Electrical Coronas :Their Basic Physical Mechanisms. University of California Press, 1965
- [LUS-05] : Lushnikov A. A., and Kulmala, M. "Kinetic Theory of Particle Charging in the Free-Molecule Regime", *J. Aerosol Sci.*, 36:1069–1088, 2005.
- [McM-99]: McMurry P. H., "A review of atmospheric aerosol measurements", *Atmospheric environment*, 34, 1959-1999, 2000
- [MAR-78]₁: Marlow, W. H. "Unipolar aerosol diffusion charging: I. Particle dielectric constant and ion mobility distribution effects". *Journal of Colloid and Interface Science*, 64, 543–548, 1978
- [MAR-78]₂: Marlow, W. H. "Unipolar aerosol diffusion charging: II. Ion and aerosol polydispersities: the "diffusion charging mobility analysis" hypothesis". *Journal of Colloid and Interface Science*, 64, 549–554, 1978
- [MED-00] : Medved, A., Dorman F., Kaufman, S. L., Pocher, A. "A new corona based charger for aerosol particles". *Journal of Aerosol Science*, 31, S616-S617, 2000
- [MAD-75] : Madelaine G.J., "Formation et évolution de l'aérosol atmosphérique", *Colloque Cg*, supplément au N° 12, Tome 36, (1975), page C8-1, 1975

- [MAR-91]: Marple, V.A., Rubow, K.L., et Behm, S.M., "A micro-orifice uniform deposit impactor (MOUDI): description, calibration, and use". *Aerosol Science and Technology*, 14, 434-446, 1991
- [MAR-06]₁: Marquard, A., Meyer, J., Kasper, G. (2006) Characterization of unipolar electrical aerosol chargers—Part I "A review of charger performance criteria". *Aerosol Science* 37 1052 – 1068, 2006
- [MAR-06]₂: Marquard, A., Meyer, J., Kasper, G. "Characterization of unipolar electrical aerosol chargers—Part II Application of comparison criteria to various types of nanoaerosol charging device". *Aerosol Science* 37 (2006) 1069 – 1080, 2006
- [MAR-07]: Marquard, A. "Unipolar field and diffusion charging in the transition regime- Part I: A 2-D limiting-sphere model". *Aerosol Science and Technology*, 41, 597 -610, 2007
- [NAS-71] : E. Nasser, *Fundamentals of gaseous ionization and plasma electronics*, Wiley Interscience, 1971
- [NAT-59] : Natanson G. L., "The Theory of Volume Recombination of Ions", *Soviet Phys. – Tech. Phys.* 4:1263–1269, 1959
- [NAT-60] : Natanson G. L., "On the Theory of the Charging of Amicroscopic Aerosol Particles as a Result of Capture of Gas Ions", *Soviet Phys. – Tech. Phys.* 5:538–551, 1960
- [PAU-32]: Pauthenier, M. M. & Moreaut-Hanot, M. M. "Le charge des particules sphériques dans un champ ionisé". *Journal de Physique*, 7(3), 591–613, 1932
- [QUA-92]: Quant F.R., Caldow R., Sem G.J., Addison T.J. "Performance of condensation particle counters with three continuous-flow designs". *J. aerosol Sci.*, **23 S1**, S405-S408, 1992
- [REI- 96] : Reischl, G. P., Makela J. M., Karch R., , Necid. J., "Bipolar charging of ultra fine particles in the size range below 10 nm". *Journal of Aerosol Science*, 27, 931-949, 1996
- [SEM-02]: Sem G. "Design and performance characteristics of three continuous-flow condensation particle counters: a summary". *Atmospheric Research* **62**, 267-294, 2002
- [SIG-82]: Sigmond, R. S. "Simple approximate treatment of unipolar space-charge dominated coronas: the Warburg law and the saturation current". *J. Appl. Phys.* 53 (1982) 891-898, 1982
- [SMI-75] SMITH W.B., McDONALD J.R., "Development of a theory for the charging of particles by unipolar ions", *J. Aerosol Sci.*, **Vol. 7**, pp. 151-166, 1975
- [STO-91]: Stober J., Schleicher B., and Burtscher H., "Bipolar diffusion charging of particles in noble gases" *Aerosol Science and Technology*, 14, 66 -73, 1991
- [TAM-98] : Tammet H, "Electrical aerosol spectrometer of Tartu University". *J. Aerosol Sci.*, 1998, 29, s427-s428
- [TOW-14] : Townsend J.S., *Electricity in Gases*, Oxford University Press, 1914

- [TOW-82]: Townsend, J.S., "The diffusion of ions into gases "Philosophical Transactions A, 193, 129-158, 1899
- [TRI-38] : Trichel, G.W., "The Mechanism of the Negative Point to Plane Corona Near Onset". Physical Review, **54**, 1078, 1938
- [UNG-01] :Unger, L. "Charge d'aérosols par décharge électrique pour la filtration d'effluents particuliers" Thèse de l'UPS, 2001
- [UNG-01] :Unger, L., Boulaud, D., Borra, J. P. "Unipolar field charging of particles by electrical discharge: effect of particle shape". Aerosol Science, 35, 965–979, 2004
- [VIV-08]: Vivas, M. M., Hontañón, E., Schmidt-Ott, A. "Reducing multiple charging of submicron aerosols in a corona diffusion charger". Aerosol Science and Technology, 42, 97 -109, 2008
- [WAR- 89] : Warburg E., "Über die spitzenentladung. Wied". Ann. 67 (1889) 69 83, 1889
- [WIL-92] : Willeke K.,Baron P.A, Aerosol measurements: Principles, techniques and applications, Van nostrand reinhold, New York, 1992
- [WHI-51]: White, H. J. "Particle charging in electrostatic precipitation". AIEE Transactions, 70, 1186–1191, 1951
- [WHI-61]: Whitby, K. T., "Generator for producing high concentration of small ions". The Review of Scientific Instruments, 32, 1353-1355, 1961
- [WHI-63]: White, H. J. "*Industrial Electrostatic Precipitation*". Addison-Wesley Publishing Company Inc, 1963
- [WHI-66]: Whitby, K.T., Clark, W.E., "Electric aerosol particle counting and size distribution measuring for 0,015 to 1 μ size range. Tellus, 18, 573-586, 19

ANNEXE 1 : PRINCIPE DU "DIFFERENTIAL MOBILITY ANALYZER" (DMA)



La détermination de la distribution en taille d'un aérosol à l'aide de l'analyseur de mobilité différentielle (DMA) repose sur la charge et la sélection des particules selon leur mobilité électrique.

L'électrode centrale, polarisée négativement ou positivement, attire les particules de charge opposée. Pour une tension appliquée, seules les particules dans la gamme de mobilité sélectionnée sortent par la fente percée en bas du cylindre intérieur.

Figure 119 : schéma de principe du DMA

Les particules de mobilité supérieure seront collectées sur la partie supérieure de l'électrode centrale, tandis que les particules moins mobiles sortiront par la sortie principale d'air en excès. Il existe donc une relation directe entre la tension appliquée et la gamme de mobilité sélectionnée.

Pour une tension donnée V , la mobilité moyenne sélectionnée ($\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) est donnée par la relation $Z = \frac{[Q_t - 0,5(Q_s + Q_a)] \text{Ln}(r_2 / r_1)}{2\pi V L}$, où Q_t est le débit total dans le DMA (cm^3s^{-1}),

Q_s et Q_a les débits définis sur la Figure, r_1 et r_2 les rayons interne et externe de l'espace inter-électrodes, et L la longueur du tube de collection entre l'injection et la fente de sélection.

Les particules submicroniques sont majoritairement mono-chargées. Toutefois, le traitement des données permet de tenir compte des charges multiples pour définir la distribution granulométrique. Une correction est appliquée aux concentrations mesurées afin de tenir

compte de l'efficacité de comptage du CNC en fonction du diamètre des particules ainsi que des pertes par diffusion et répulsion électrostatique dans l'appareil.

ANNEXE 2 : PRESENTATION DU COMPTEUR A NOYAUX DE CONDENSATION

Principe de fonctionnement

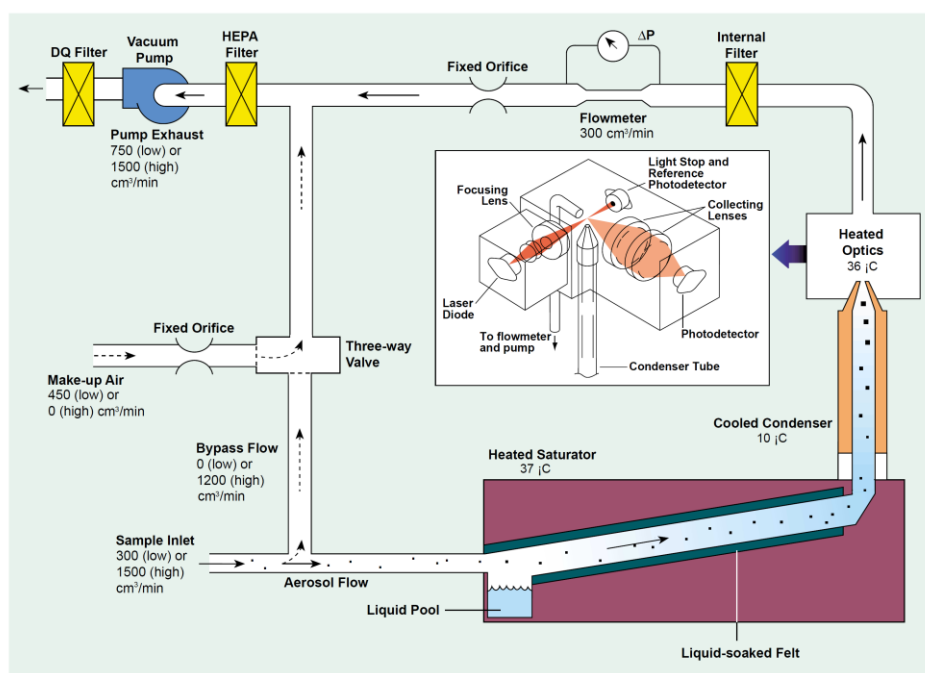


Figure 120 : schéma de fonctionnement du CNC (source : documentation TSI)

L'aérosol est aspiré dans le Compteur de Noyaux de Condensation (CNC) à un débit de 0,3 lpm (litres par minute), puis injecté dans un saturateur partiellement rempli de butanol ($T = 35\text{ °C}$). Le butanol s'évapore dans le flux d'aérosol. Le gaz contenant les particules et les vapeurs entre ensuite dans un condenseur où la température est abaissée à 10 °C . Ceci entraîne la sursaturation des vapeurs et leur condensation sur les particules dont le diamètre est supérieur au diamètre minimal de détection. La croissance des particules par condensation leur permet d'atteindre un diamètre supérieur à 300 nm. Elles peuvent alors être détectées optiquement grâce à une source de lumière blanche et à des photomultiplicateurs.

Artéfacts de mesure liés au CNC

Outre les fluctuations réelles de la densité de particules détectables, des variations artéfactuelles de la concentration mesurée sont observées lors de certains changements de calibre de mesure du CNC. Elles sont liées à une modification de la durée de calcul de la moyenne glissante ou à un basculement du mode de détection photométrique (intégration de la lumière diffusée par l'ensemble des particules se trouvant dans la zone de détection) au comptage individuel des impulsions lumineuses correspondant à la lumière diffusée par chacune des particules. Lorsque la concentration décroît en-deçà de 10^2 cm^{-3} , le calibre de mesure 10^2 est conservé jusqu'à une concentration comprise entre 30 et 50 cm^{-3} . Lors du basculement au calibre 10^1 , la durée de calcul de la moyenne glissante passe de 2 à 20 s. Comme la concentration est décroissante, la prise en compte des comptages effectués durant les 20 s précédents le changement de calibre pour le calcul de la moyenne glissante entraîne une brusque augmentation de la valeur affichée par l'appareil.

Lorsque la concentration est supérieure à 10^4 cm^{-3} et devient transitoirement inférieure à cette valeur, on passe du mode de comptage photométrique au comptage individuel des particules, avec une moyenne glissante calculée sur 1s de temps actif (ou « live-time »), correspondant au temps pendant lequel le détecteur n'est pas rendu momentanément inactif suite à la détection d'une particule. Or si immédiatement après le passage au calibre 10^3 la concentration de particules redevient supérieure à 10^4 cm^{-3} , un temps actif de 1s correspond à un temps effectif pouvant atteindre quelques minutes, pendant lequel la valeur affichée par le CNC demeure constante.

un passage momentané de la concentration au-delà de 10^4 entraîne un basculement du mode de comptage des impulsions individuelles au mode photométrique, qui fait apparaître un pic de concentration.

ANNEXE 3: PRESENTATION DU "PARTICLE COUNTER SIZER" (PCS)

Le PCS (particle counter sizer) mesure la lumière dispersée par une particule traversant un volume de mesure constamment illuminé. L'intensité de la lumière est l'image de la taille de la particule, le nombre d'impulsions par unité de temps est proportionnel à la concentration de particules.

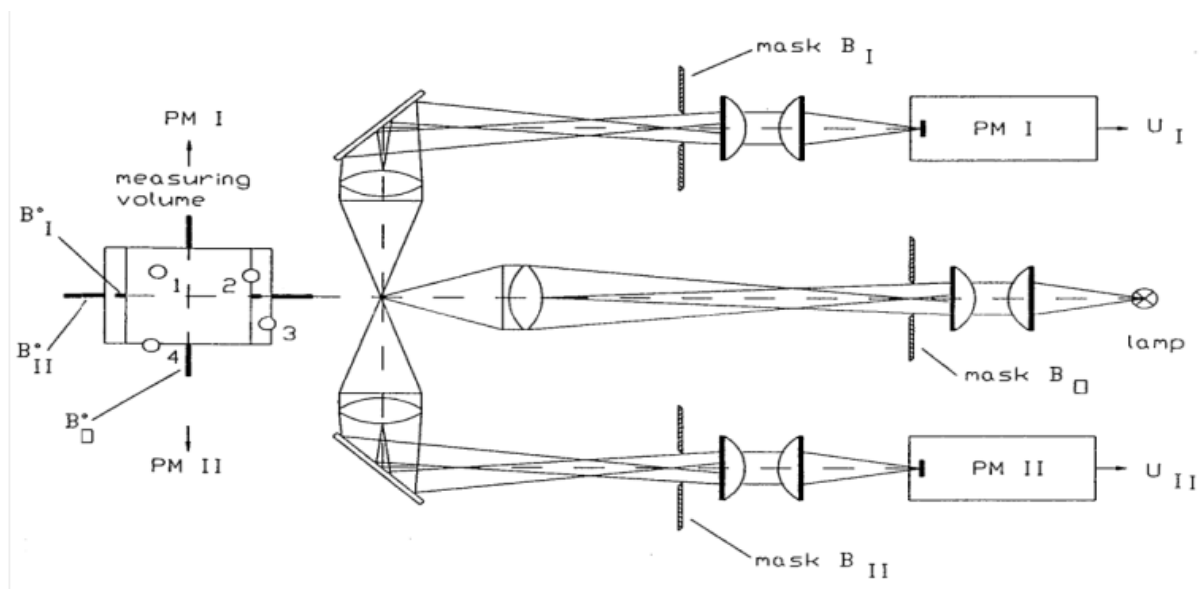


Figure 121: schéma de principe du fonctionnement du PCS-2010

La lumière d'une lampe Xenon traverse une ouverture rectangulaire l'image de cette ouverture est focalisée par un système de lentilles vers un volume de mesure. La lumière dispersée par la particule passe aussi via des ouvertures rectangulaires avant d'être détectée par deux systèmes photomultiplicateurs. Ces ouvertures sont de tailles différentes de sorte que le photomultiplicateur II voie un champ plus grand du volume de mesure. En comparant les deux signaux U_I et U_{II} il serait possible de distinguer entre les particules qui ont traversés le volume interne et celle qui sont partiellement en dehors du volume de mesure. Par cette technique l'erreur liée aux zones frontières est éliminée. La valeur de mesure est prise sur le PM2. La mesure du PM1 est utilisée pour la correction liée à la zone frontière.

Pour avoir des mesures fiables avec le PCS, des précautions doivent être prises. En effet, deux causes essentielles peuvent engendrer de mauvais résultats de mesure. La première est liée à la représentativité de l'échantillon, et la deuxième est liée à concentration de particule très grande par rapport à la concentration limite de mesure du PCS à cause du phénomène de coïncidence.

ANNEXE 4 : PRINCIPE DU GENERATEUR SINCLAIR -LA MER (SLG)

Le générateur SLG à condensation permet de générer un aérosol monodisperse dans une large gamme de taille (0,4 à 10 μm) et de concentration (jusqu'à $4 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$). Le principe de la génération est basé sur le contrôle de la condensation hétérogène de la vapeur sur les noyaux de sel.

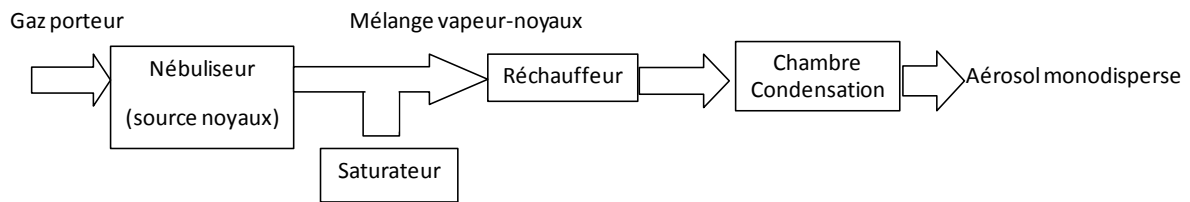


Figure 122 : diagramme de la condensation hétérogène

La taille de l'aérosol produit dépend du rapport de concentration de la vapeur et de la concentration des noyaux de condensation :

$$d_m^3 \approx \frac{C_v}{C_N} \approx \frac{P_{sat}(T_{sat})}{T_{sat} c_N}$$

La génération de l'aérosol se décompose en quatre étapes :

- Génération des noyaux de condensation : Un nébuliseur alimenté avec de l'air sec et filtré sous pression (2-10 bars) permet de produire un aérosol polydisperse (gouttelettes d'eau) par nébulisation d'une solution de NaCl. La fraction des gouttelettes de diamètre $>1 \mu\text{m}$ est impactée en sortie du nébuliseur. Seules les gouttelettes de diamètre plus petit sont alors sélectionnées. Un sécheur placé en sortie du nébuliseur permet d'évaporer l'eau contenue dans les gouttelettes. Un aérosol de cristaux de sel (10-100 nm) est alors formé et sert de noyaux de condensation. La taille de ces noyaux dépend alors de la concentration de la solution. La taille des noyaux a une influence importante sur la taille de l'aérosol produit après condensation : pour avoir une granulométrie de taille constante (pour les mêmes conditions de fonctionnement : température du saturateur, débit dans le saturateur, température du réchauffeur...) il est primordial d'avoir une concentration de la solution

constante. La concentration de l'aérosol généré dépend de la concentration des noyaux (plus faible en raison des pertes).

- Production de vapeur : l'air sortant du sécheur et entraînant les noyaux de sel sont injectés dans le saturateur. Les vapeurs sont produites par bullage de l'air dans de l'huile (dans notre cas le DEHS) chauffé à la température T_{sat} . La taille de l'aérosol dépend de la quantité de vapeur donc de la température T_{sat} . La pression de saturation s'écrit sous la forme $(A.e^{BT_{sat}})$. Le diamètre de l'aérosol est donc donné.

$$d_m^3 \approx \frac{A e^{BT_{sat}}}{T_{sat}}$$

A concentration de noyaux constante, plus la quantité de vapeur dans le mélange final est importante plus le diamètre de l'aérosol est grand.

- Homogénéisation des vapeurs condensées : L'aérosol entrant dans le réchauffeur est composé de noyaux de condensation des gouttes de vapeurs condensées issues du saturateur et des gouttes de liquide produites par éclatement des bulles dans l'évaporateur. En sortie du saturateur l'aérosol est donc largement polydisperse. Ce mélange est donc chauffée à une température $Tréch=300^\circ C$ supérieure à celle du saturateur ce qui permet d'évaporer tout le liquide restant.

- Condensation hétérogène de la vapeur sur les noyaux : en sortie du réchauffeur, un tube en verre sert à condenser les vapeurs sortant du réchauffeur sur les noyaux de condensation. Grace au rechauffeur qui permet l'homogénéisation des vapeurs, l'aérosol généré est monodisperse (écart type < 1,2).

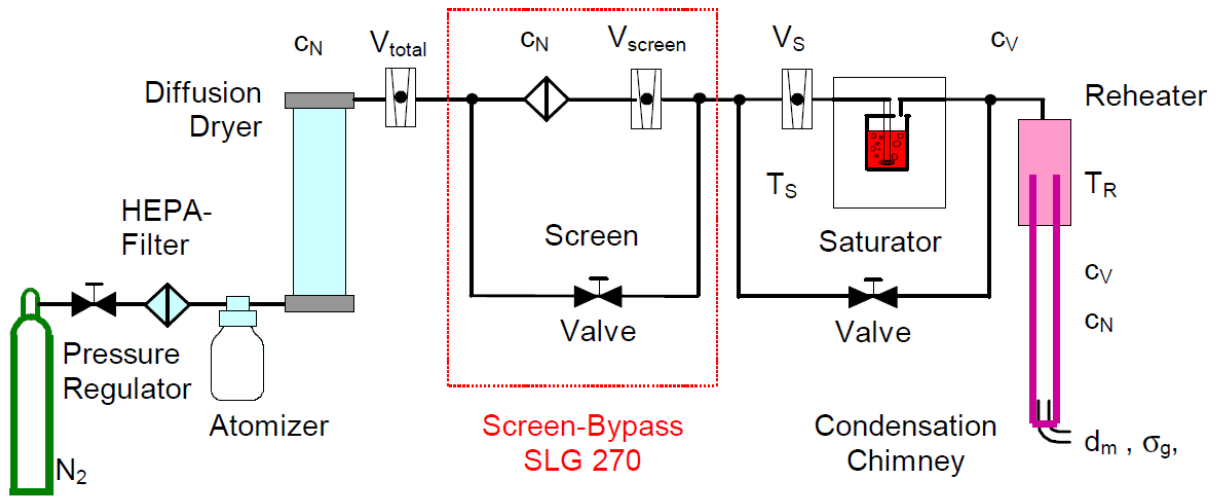


Figure 123: schéma de principe du SLG

Pour produire un aérosol aux caractéristiques stables dans le temps et reproductibles entre les essais, il est nécessaire de respecter une mise en régime de la génération d'au minimum quinze minutes.

ANNEXE 5 : CALIBRATION DES APPAREILS DE MESURE DE CONCENTRATION

La mesure de concentration dont dépend l'évaluation du nombre moyen de charge et la pénétration du chargeur est faite par le PCS. La calibration de ce dernier est donc primordiale. Pour cela, le CNC est d'abord calibré par comparaison à l'électromètre. Une fois le CNC calibré, le PCS est à son tour calibré par comparaison à l'électromètre.

Tous les débits sont calibrés à 5% près à l'aide d'un étalonneur de débit.

Les mesures de concentrations sont réalisées simultanément sur la gamme de concentration requise pour l'étude de 10^3 à 10^5 cm^{-3} , avec un aérosol de 460 nm, monodispersé et monochargé, après sélection au DMA. Afin d'éviter le biais de prélèvement anisocinétique, l'aérosol est prélevé de façon isocinétique à $0,3$ $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ pour le CNC et à 5 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ pour le PCS et aux mêmes débits pour l'électromètre.

L'électromètre et le CNC

L'électromètre étant préalablement étalonné, la mesure de concentration au CNC est validée par comparaison aux concentrations obtenues à l'électromètre. La concentration de l'aérosol est évaluée à partir du courant de particules chargées mesuré à l'électromètre. Le nombre de charge étant de 1 en sortie du DMA avec un aérosol monodispersé en entrée, la concentration de l'aérosol est donnée par $N_p = I_p / e \cdot Q_{\text{électromètre}}$.

Le setup expérimental utilisé est représenté par la Figure 124.

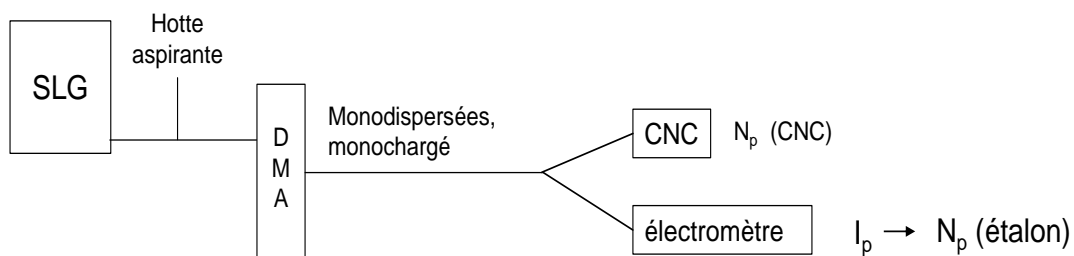


Figure 124 : setup de comparaison des concentrations mesurée au CNC et à l'électromètre

La calibration est faite pour des concentrations $6 \cdot 10^3$ à $2 \cdot 10^5$ cm^{-3} , couvrant les deux modes de comptage du CNC « live time » (10^3 - 10^4 cm^{-3}) et « photométrique » ($>10^4$ cm^{-3}).

La concentration mesurée au CNC est tracée en fonction de la concentration calculée à partir du courant de particules chargées mesuré à l'électromètre TSI.

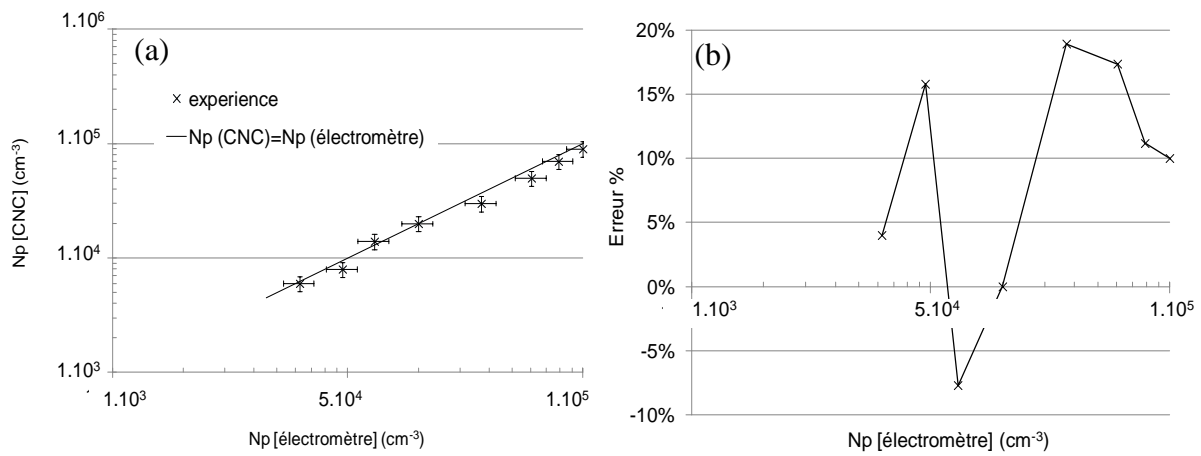


Figure 125 : concentration mesurée au CNC en fonction de la concentration évaluée à l'électromètre et évaluation d'erreurs entre les deux instruments.

Les concentrations mesurées au CNC et celles évaluées à partir des mesures du courant de particules chargées avec l'électromètre sont en accord à 15% près. Cependant, une augmentation de l'erreur entre les deux mesures autour de 10⁴ cm⁻³ allant jusqu'à 18% est caractéristique d'un défaut d'étalonnage du CNC au basculement du mode de fonctionnement du CNC.

Le PCS

Une fois le CNC calibré en concentration par rapport à l'électromètre, le PCS est à son tour calibré par rapport au CNC.

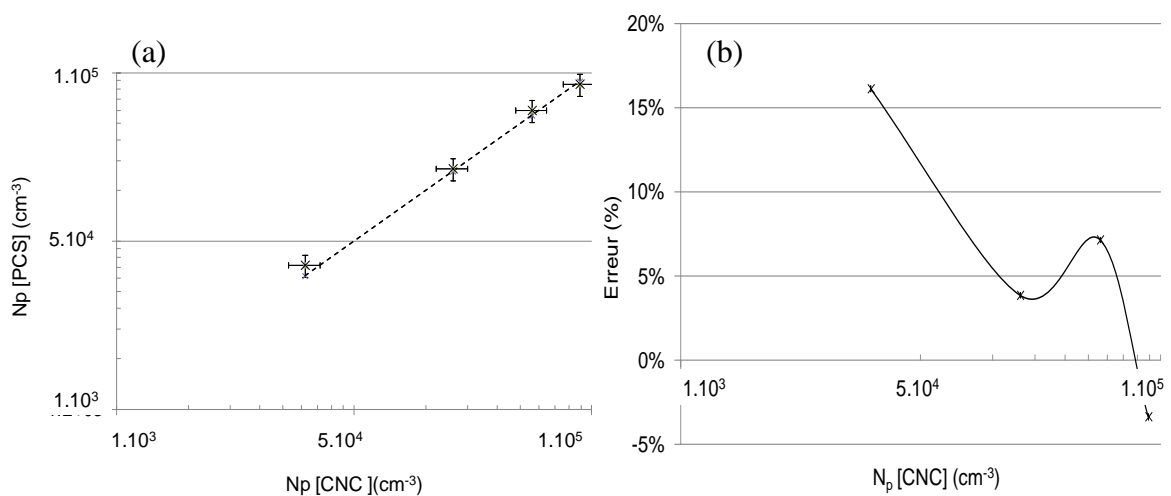


Figure 121 : concentration mesurée au CNC en fonction de la concentration celle mesuré au PCS et évaluation d'erreurs entre les deux instruments

Les concentrations mesurées au PCS et au CNC sont en accord à moins de 16%

ANNEXE 6 : PRELEVEMENT AEROSOL

Mesurer un aérosol nécessite d'en prélever un échantillon représentatif (même granulométrie) à partir de son environnement jusqu'à l'appareil de mesure.

Pour l'étude de la charge de l'aérosol dans le cadre de notre étude, un aérosol est prélevé du générateur d'aérosol. Sachant que pour estimer le nombre moyen de charge par particule (donc le produit $N_i \cdot \tau$) et la pénétration du chargeur (cf.), deux mesures de concentration sont effectuées, en aval et en amont du chargeur. La fiabilité de ces estimations relève en partie de la représentativité de l'échantillon prélevé. Le dimensionnement du prélèvement est donc une étape cruciale dans l'étude.

Tout dispositif de prélèvement peut contenir différents éléments placés en série. Une entrée d'aspiration dont la géométrie et les dimensions définissent son efficacité de captage. Un élément de transport, un sélecteur permettant généralement un tri par taille, un collecteur (filtre, élément d'impaction ou zone de comptage optique. La fonction efficacité d'échantillonnage peut être décomposée en fonction plus élémentaire liée aux efficacités de chaque élément.

Le premier critère à respecter pour tout prélèvement d'aérosol est que l'orifice d'aspiration doit être à bords minces. Un orifice à bords mince est un orifice d'une épaisseur théorique nulle. Une limite supérieure de l'épaisseur des bords est donnée par Belyaev et Levin (1974) pour laquelle ceux-ci peuvent être considérés comme minces car n'ont aucune influence sur l'écoulement du flux incident. Ceci est possible si le rapport D_{ext}/D_{int} des diamètres extérieur et intérieur ne doit pas dépasser 1,1.

Le paramètre représentant l'écoulement au voisinage d'un orifice d'aspiration est défini par le rapport des vitesses R appelé rapport d'isocinétisme :

$$R = \frac{W}{U_s}$$

W étant la vitesse du fluide en amont du capteur et U_s la vitesse moyenne dans l'orifice du captage.

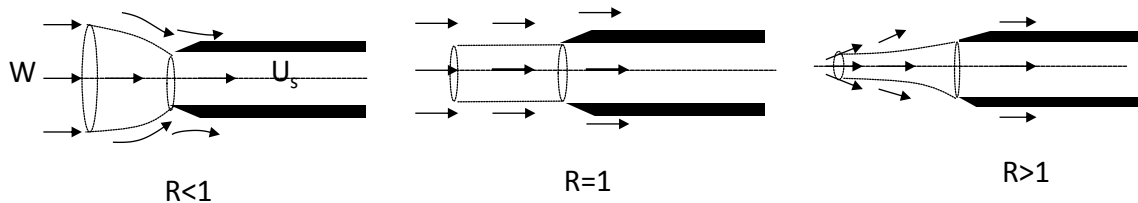
Pour une sonde *circulaire* à bords mince trois configurations sont donc possibles :

Le captage isocinétique ($R=1$): dans ce cas l'orifice du capteur est placé de façon *isoaxiale* (l'axe de l'orifice parallèle aux lignes de courant de l'écoulement moyen) et la vitesse d'aspiration U_s est égale à la vitesse du gaz W .

Le captage superisocinétique ($R<1$) : le tube de courant est convergent vers l'orifice, la vitesse moyenne sur la section du tube augmente au se rapprochant du capteur

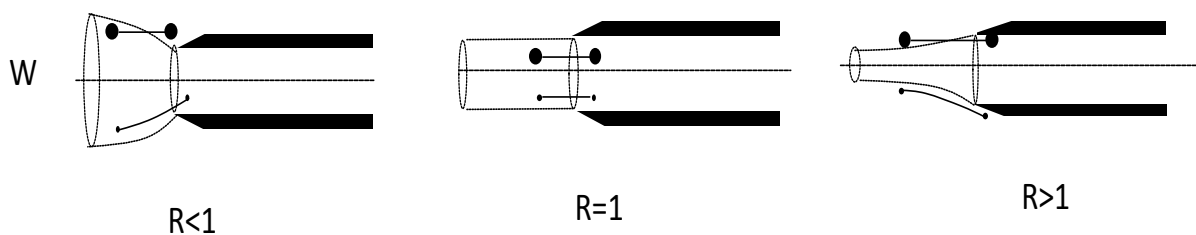
Le captage subisocinétique ($R>1$) : dans ce cas le tube de courant est divergent vers le plan d'orifice.

La figure schématise les tubes de courant au voisinage d'un orifice cylindrique à bords minces.



Ces termes sont normalement applicables pour un écoulement laminaire. Cependant, ils sont aussi utilisés dans le cas de régimes turbulents en supposant l'écoulement moyen non affecté de façon significative par la turbulence.

L'isocinétisme ($R=1$) permet un échantillonnage représentatif de l'aérosol réel. En effet, toutes les particules dans ce cas suivent les lignes de courant qui restent parallèles, l'efficacité de captage (E_c) est unitaire et indépendante de la taille des particules.



En revanche, dans le cas de subisocinétisme ($R>1$) on dit qu'il y a enrichissement car les particules d'inertie importante se trouvant à l'extérieur du tube sont captés par l'orifice tandis que les plus fines suivent les lignes de courant. Dans l'autre cas, superisocinétique ($R<1$), il y'a au contraire appauvrissement c'est-à-dire les particules de forte inertie ne sont pas captés.

Deux paramètres sont alors à prendre en compte du rapport d'isocinétisme (R) et de l'inertie de la particule quantifiée par le nombre de Stokes :

$$St = \frac{\rho_0 D_a^2}{18\mu} \cdot \frac{W}{D_{int}}$$

Avec D_a le diamètre aérodynamique de la particule, ρ_0 la masse volumique de référence (1000 kg/m³), μ la viscosité dynamique du fluide porteur et D_c le diamètre intérieur du conduit.

Belyaev et Levin (1974° ont développé une équation à partir de données expérimentales d'efficacité de captage :

$$E_c = 1 \left[1 - \left(1 + \left(2 + \frac{0,617}{R} \right) St \right)^{-1} \right] (R - 1)$$

D'après Stevens (1986), cette formule donne des résultats avec une précision d'environ 10% pour $0,2 < R < 5$ et un nombre de Stokes entre 0,05 et 1.

Des calculs de trajectoires effectués par Rader et Marple (1988) montrent que cette formule est valable pour des Stokes allant jusqu'à 10.

Plus récemment, et par comparaison a un grand nombre de données expérimentales Grinshpun et al. (1990) donnent une plage de fonctionnement de l'équation :

$$D_{ext}/D_{int} < 1,1 \quad \alpha_s < 15^\circ \quad R_e \leq 10^5 \quad \text{et} \quad 0,03 < R < 5,6$$

α_s est l'angle au sommet du capteur et R_e le nombre de Reynolds de l'écoulement du gaz porteur W .

ANNEXE 7: DIMENSIONNEMENT DU PIEGE A IONS

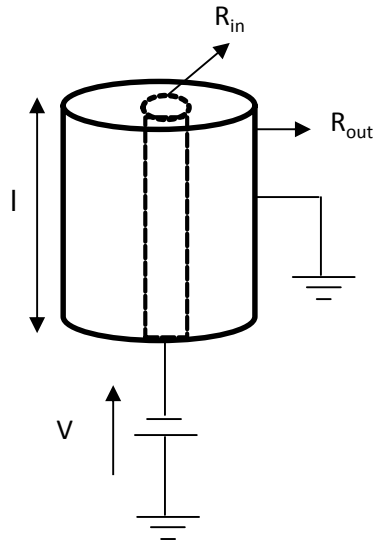


Figure 126 : schéma de l'ESP pour le calcul de la tension critique à appliquer

On considère un précipitateur électrostatique (ESP) formé de deux cylindres métallique concentrique, de diamètres R_{in} et R_{out} .

Le champ dans l'espace inter-électrodes s'écrit sous la forme

$$E(r) = V / r \cdot \ln (R_{out} / R_{in})$$

Avec V la tension appliquée entre les deux cylindres.

Hypothèses simplificatrices utilisées pour le calcul

- Ecoulement d'air laminaire

$$E = E_{min} = E(R_{out})$$

- Le champ de charge d'espace « E_p » n'affecte pas le champ total « E_{tot} »
- La vitesse de dérive électrostatique entre les deux cylindres $V_{dérive}$ d'une espèce chargée de mobilité électrique Z s'exprime sous la forme : $V_{dérive} = \mu \cdot E$
- On considère le champ électrostatique le plus faible (c.à.d. $E(R_{out})$)

Le temps de dérive électrostatique associé (temps pour qu'une particule parcourt la distance $R_{out} - R_{in}$ sous l'effet du champ électrique) est alors :

$$t_{dérive} = \frac{R_{out} - R_{in}}{V_{dérive}}$$

Par ailleurs, le temps de transit dans l'ESP lié à la convection du gaz s'exprime sous la forme

$$t_{transit} = \frac{\pi(R_{out}^2 - R_{in}^2)l}{Q}$$

Avec l longueur du cylindre et Q débit du gaz

Pour que toutes les espèces chargées de mobilité électrique Z soit collectées sur les électrodes durant leur transit dans l'ESP, on doit avoir :

$$t_{dérive} \leq t_{transit} \Leftrightarrow V_{crit} = \ln(R_{out} / R_{in}) \cdot Q / \pi \left(1 + \frac{R_{in}}{R_{out}}\right) \cdot l \cdot \mu$$

Il y aura donc collection de toutes les particules chargées de mobilité μ si la tension V appliquée aux bornes de l'ESP est supérieure à la tension seuil $V_{critique}$

Le rayon R_{out} choisi est le même que celui du chargeur de façon faciliter le branchement sans avoir à faire des adaptations des sections ($R_{out} = 1$ cm). Aussi, on s'impose des tensions d'alimentation de quelques dizaines de Volt. Dans ces conditions, un rayon interne de 0,9 cm et une longueur l de 1,5 cm permettent la collection des ions pour une tension de moins de 10 V.

ANNEXE 8 : CONFINEMENT EHD DES IONS DANS LA DECHARGE

(Soumis à Journal of Electrostatics)

Ion current density profile on the plane in negative corona : Effect of hydrodynamic confinement

A. Bouarouri⁽¹⁾, N. Jidenko⁽¹⁾, J.-P. Borra⁽¹⁾, F. Gensdarmes⁽²⁾, D. Maro⁽²⁾, D. Boulaud⁽²⁾

¹ Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (CNRS – Univ. Paris XI F-91405) SUPELEC, 91192 Gif-sur-Yvette cedex, France

² Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette, France

ABSTRACT

This paper deals with the confinement of negative ions in a point-to-drilled plane corona discharge. Radial ion current density profile measurements on the earthed plane are performed with a gas flow. An experimental setup is first validated by comparison with the Warburg's law without gas flow. It has been shown that the gas flow leads to an ion confinement towards the central axis. Above a critical gas velocity in the hole, no more effect is measurable. These observations are discussed in terms of physical processes (advection, space charge and electric wind).

1. Introduction

The term "aerosol" refers to a suspension of liquid or solid particles in a gas. Since, electrical properties of aerosol are well defined; aerosol charging is commonly used for electrofiltration and aerosol size measurement. Well controlled size-charge relations have been established when aerosol is charged by collection of gaseous ions. For unipolar charging of aerosol, electrical discharges are often used for ion production [1-5]. Indeed, these ion sources produce high and stable ion densities. The aim of this work is to develop an aerosol sizer with a response time of 0.1 s, based on aerosol charging with a residence time smaller than 0.05 s. To prevent from aerosol losses by electro-collection in the gap, the charging is performed in the post-discharge zone. In this work, a point-to-hole corona discharge is studied. As already proposed by Whitby in 1961 [5], a gas flow is used to blow ions from the gap through the extraction hole in the earthed electrode to the post-discharge charging zone.

The mean number of charges per particle depends on the aerosol diameter and on the $N_i \cdot t$ product, with N_i , the ion density and t the transit time of aerosol in the ion density. Typical $N_i \cdot t$ products are of about $10^{6-7} \text{ s} \cdot \text{cm}^{-3}$ in diffusion charger [2-3]. For aerosol charging within 0.05 s, high initial ion densities of about 10^{10} cm^{-3} at the inlet of the charging zone are required to compensate the short charging time and reach mean ion densities of about 10^8 cm^{-3} . Actually, electrostatic repulsions induce a decrease of the ion density by more than 4 orders of magnitude in 0.1 s [5-6]. Hence, to reach such post-discharge ion density, the effects of a gas flow injected in the discharge gap on the radial distribution of ion current density on the earthed plane ($j(r)$)

hereafter referred as the current density profile in $\text{A} \cdot \text{m}^{-2}$) has been investigated.

In 1889, Warburg measures the current density profile in a point-to-plane corona discharge, without a hole, or a gas flow. To do so, an earthed plane composed by a set of flat concentric metal rings is used to define an empirical law [7]. The current density profile has been proved to evolve as follow:

$$j(r) = \begin{cases} J(0) \cos^m \theta(r) & \text{for } \theta < 60^\circ, \\ 0 & \text{for } \theta > 60^\circ, \end{cases}$$

with $J(0) = \alpha V(V-V_0)/d^n \sim I/k \cdot d^2$

where $J(0)$ is the axial peak current, θ is the semi-vertical cone angle of the discharge given by: $\theta = \tan^{-1} r/d_{\text{gap}}$. where r is the radial planar coordinate and d_{gap} is the gap length. Warburg and other authors [7-9] define the power m and the coefficient k ($m=4.82$ for positive polarity and 4.65 for negative polarity and $k \sim 2$). The Warburg's law results on an electrohydrodynamic (EHD) competition in the discharge gap controlling the transport of ion. Electrostatic forces on ions depend on the electric field (Laplace and space charge electric fields). Hydrodynamic forces depend on the relative velocity of ion and neutral molecule. The neutral molecule velocity is controlled by the electric wind. The radial component of the electric field defines the radial drift of ions; the axial component and the electric wind [8] give the axial movement. This EHD competition can be described by the ratio of the mean axial and radial times ($t_{\text{rad}}/t_{\text{ax}}$) [6]. Warburg sets this law for centimetre ranges. Then, it has been confirmed by several authors by both experimental and theoretical investigations. Experimental investigations have been performed for millimetre and centimetre range [9-10,11-13], to several meters by Allibone [15]. Theoretical investigations have been conducted by Sigmond [16] and Jones [17] and example of simulations are given in [13, 18].

Goldman et al. give an approximation of the axial peak current $j(0)=I/k d_{\text{gap}}^2$, with $k=2$ [11]. He shows that the Warburg's law is valid only in air gas. However, he observes small "dimples" on the point axis and explains this fact by hydrodynamic effects due to the electric wind phenomena.

This paper aims to identify the effect of the gas flow on the current density profile. After the calibration and the validation of the experimental setup, the effects of a hole in the earthed plane and a gas flow on the current density profile are investigated.

2. Materials and methods

The experimental set-up used for the characterization of the discharge current and for the rings current is depicted in figure 1. The measurements are made in room conditions with temperature range between 18 and 25°C and the pressure between 990 and 1010 mbar.

The active electrode (metal point) is a tungsten needle with a controlled curvature radius connected to a negative high voltage. The earthed electrode is a plane composed of seventeen concentric metal rings separated by thin insulator trails (Figure 1).

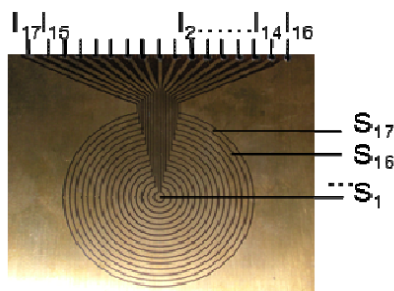
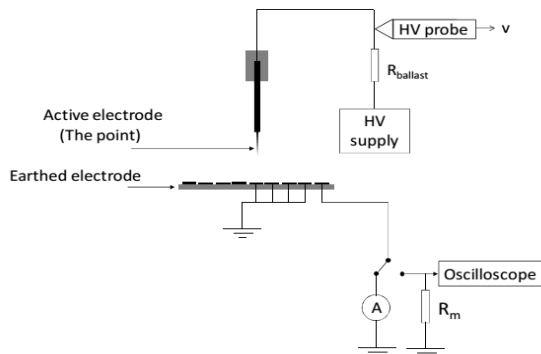


Figure 1: Experimental setup used for discharge characterization and I_r measurements

The point is connected to a high voltage supply through a resistor ($R_{\text{ballast}}=10 \text{ M}\Omega$). This resistor induces a voltage drop ($\Delta V= R_{\text{ballast}} \cdot I_{\text{discharge}}$).

The point voltage (V_d , in V) is measured with a high voltage probe (X 1000) and an oscilloscope. The discharge current (I_d , in A) is measured with all the rings connected to an electrometer and visualised with an oscilloscope through a resistor ($R_m= 50 \Omega$ for Trichel characterization and $R_m=10 \text{ k}\Omega$ for mean current).

A clean and dry air (without aerosol, $\text{COV}<10 \text{ ppmv}$, $\text{Hr}<5\%$) is introduced in the discharge. The gas flow is injected above the plane and gets out through a 2 mm hole in the point axis. The distance of the walls is chosen to limit the modification of the radial electric field and the related ion distribution in the gap ($D_{\text{walls}}=5 \cdot d_{\text{gap}}$). The pressure in the discharge volume is fixed to 1020 mbar, whatever the gas flow rate is, between 5 and 30 lpm.

To define the $j(r)$ profile, the current on each metal ring is measured and divided by the ring area. The current density profiles are plotted versus the mean radius (between inner and outer diameter) of each ring. However, the ring area does not represent the apparent collection surfaces (cf. §3.1.2). The radial resolution is too low on the center to observe the dimple described in [9],

Finally, the current is measured on the central disc without the hole or on the first ring with the hole. The diameter of central disk (N° 1) has a diameter of 3.2 mm with a surface of 8.2 mm^2 . The exit hole diameter used for the study is $D_{\text{hole}}=2 \text{ mm}$, with a new surface of 5.1 mm^2 , leading to a first ring with the hole of about 0.6 mm width.

3. Results

3.1. Validation of the experimental setup

3.1.1. Discharge characterization

A corona discharge is a self-sustained electric discharge where an inhomogeneous electric field confines primary ionization process to the active electrode. The positive ions are produced by gas ionization and negative ions by electron attachment. These processes depend on the nature of the gas and on the reduced electric field E/N , with E , the electric field and N , the gas density. The Laplace electric field depends on the discharge voltage (V_d), the curvature radius of the point (R_p), the gap length (d_{gap}).

Negative corona discharge has two main regimes depending on the Laplace electric field profile around the point. Above the threshold voltage, depending on the discharge configuration, the discharge is ignited.

The first regime (Trichel regime) is characterized by current pulses of about 100 ns [8]. The frequency of the pulses lies between 10 to 100 kHz. Then, at higher voltage, the Corona regime is characterized by a continuous current. The discharge current, for corona discharges, can be written as $I_d = A \cdot V_d \cdot (V_d - V_0)$ where “ V_0 ” is the onset voltage and “ A ” is a constant ($F \cdot s^{-1}$) depending on the geometry and the gas (nature, pressure, temperature) [6].

Different gaps (4, 8, 11.5 13 mm) and point radius (26, 60, 80, 132 μm) have been tested. The ratio of the discharge current by the point voltage is plotted versus the point voltage in Figure 2 for a point radius of $R_p = 80 \mu m$ and a gap length of $d_{gap} = 13 mm$.

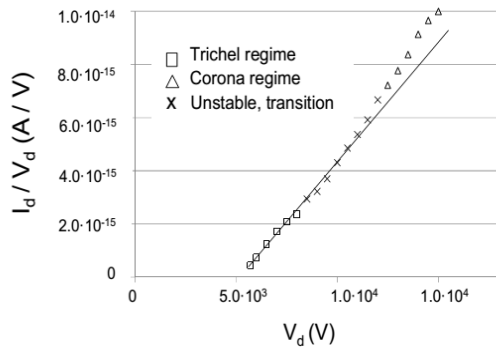


Figure 2: Characterization of the discharge ($R_p = 80 \mu m$, $d_{gap} = 13 mm$, $P = 1020 bar$, $Q_{ion} = 30 lpm$)

The ratio of the discharge current by the discharge voltage (I_d / V_d) increases linearly with the discharge voltage V_d . Thus, the discharge current respects the form of the corona discharges [6]. This result ensures the proper functioning of the discharge. In these operating conditions, both Trichel and corona regimes occur on voltage ranges of at least 2 kV. In between, a temporal combination of these two regimes occurs on a voltage range depending on the $R_{Ballast}$ value.

3.1.2. Estimation of the current density profile

The mean current density for a ring is given by the ratio between the measured current and its surface. However, the geometric ring surfaces don't represent the real collection surfaces. Measurements show that ions are drained mainly to the closer ring to the point axis (Figure 3).

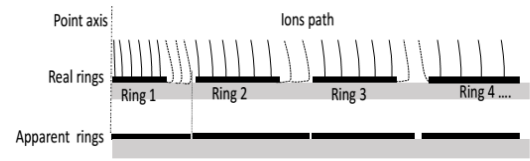


Figure 3: Ions path due to insulator trail polarization

This effect is probably due to the surface electric field due to ions collected on the trails. This local electric field limits the radial drift of ions close to the surface.

The apparent surface of collection depends on the electric field profile on the plane. Thus, insulator trails between the metal rings are taken into account for the surface calculation.

The table 1 gives the outer ring radius, geometric area, and the apparent area. The apparent areas are defined from ion current measurement and Warburg's law for 3 operating conditions (10, 17.5 and 18.5 kV).

Table 1: Apparent surfaces estimated by taking into account the effect of insulator trails on the ion collection on the rings

Ring N°	Ring radius (mm)	Geometric area (mm ²)	Apparent area (mm ²)
1	1.6	8.2	12.9
2	3.5	24.7	33.1
3	5.2	41.2	50.8
4	7	57.7	70.1
5	8.7	81.0	89.3
6	10.6	100.2	117.1
7	12.5	109.6	139.2
8	14.2	126.0	149.8
9	16	155.1	160.1
10	17.8	174.2	240.2
11, 12, 13	23.2	608	608
14, 15, 16, 17	30.3	1051	1051

In Figure 4 both ion current density profiles obtained with experimental data and with the Warburg's law in Trichel and Corona regimes are presented.

With these apparent surfaces, the current density profile $j(r)$ is coherent with the Warburg's law ($j(r) = j(0) \cos^{4.65\theta}$), within 5% for gap length $d_{gap} = 11.5 mm$ and point radius $R_p = 60 \mu m$, for a large voltage range (8-18.5 kV). The validity of these apparent surfaces is confirmed for gap length of 8 and 10 mm.

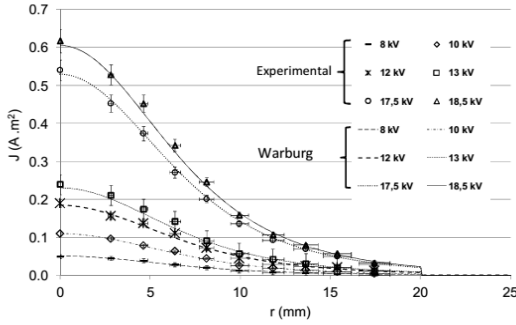


Figure 4: Ion current density profile in both corona and Trichel regime ($R_p=60 \mu\text{m}$; $d_{\text{gap}}=11.5 \text{ mm}$)

Experimental data obtained with different point radius (30, 60, 80 and 130) confirms that the point radius has no effect on $j(r)$ profiles [9]. These results confirm the validity of the experimental setup with the estimated apparent surfaces used for $j(r)$ estimation.

3.2. Measurements sensitivity

The current density profiles in the gap and on the earthed plane are controlled by both electrostatic and hydrodynamic processes. To investigate the sensitivity of the method, a negatively polarized annular electrode is positioned in the gap. Two main requirements are respected for the experiment. The first one is to avoid ion collection on the annular electrode. The annular electrode is positioned outside the volume occupied by the ions, using an inner radius larger than r_{max} (for $\vartheta=60^\circ$). The second one is to limit the electric field created by the polarized ring in the plasma zone (close to the point). A distance of 5 mm between the plane and the ring is chosen, for a gap length $d_{\text{gap}}=13 \text{ mm}$. The $j(r)$ profiles obtained without the polarization of the ring and with a polarization voltage $V_{\text{polarization}}$ of 4 kV are depicted in Figure 5.

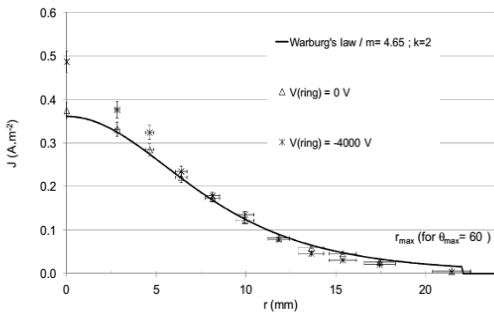


Figure 5: Effect of electrostatic confinement on $J(r)$ profile ($R_p=80 \mu\text{m}$; $d_{\text{gap}}=13 \text{ mm}$; $V=17 \text{ kV}$, $V_{\text{Ring}}= -4 \text{ kV}$)

The modification on $j(r)$ due to electrostatic confinement is highlighted with the developed

experimental setup. The $j(r)$ profile obtained without polarization of the ring $V_{\text{Ring}}=0$ is identical with the one given by the Warburg's law in the same conditions. This proves that the grounded ring has a minor effect of ion dispersion. However, for $V_{\text{Ring}}= -4 \text{ kV}$, the $j(r)$ profile is affected since current density is higher in the first rings and lower for the last ones. Thus, by using this experimental setup, the modification of the ion trajectory related to the electric field produced by the polarized ring is detectable. The radial component of the Laplace electric field with the polarized ring affects the radial drift of ion. Ions are thus confined to the central axis. Moreover, the axial electric field between the point and the ring is reduced leading to slow down ions in this zone. However between the ring and the plane, the axial electric field is higher with the polarized ring. This leads to a diminution of the ion transit time up to the plane and thus of the duration for the radial drift. The modification of radial and axial electric field leads to ion confinement toward the central axis.

3.3. Effect of the hole

The effect of the hole on the ion production (I_d) and on the ion distribution on the earthed ($j(r)$) plane is studied. The total discharge current and the planar current density are measured for two discharge voltages in both Trichel (9 kV) and Corona (17 kV) regimes.

The $j(r)$ is given in figure 6 for a complete plane and with presence of the hole without a gas flow. The discharge current is constant on both planes. A small fraction of the ion current (from 0.001 to 1 % partly measured downstream the hole using a grid positioned at 5 cm from the hole) gets through the hole probably due to the electric wind or/and the electric field lines crossing the hole. Nevertheless, with the sensitivity of the current measurement used, the same discharge voltage is required to achieve the same current. The presence of the hole on an earthed plane has thus a negligible effect on the ion production.

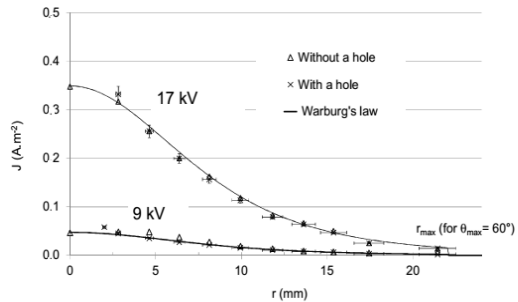


Figure 6: effect of the hole on the planar current density $j(r)$

Except for the first ring, the current density profile for both planes (complete plane and with the hole) are similar within 5% in both Trichel and Corona regimes.

Actually, the current measured on the first ring of the plane with a hole is similar to the one measured on the central disc in the case of the complete plane. The ion current density on the first ring (with the hole) is higher than the one obtained on the central disc (for the complete plane) since the surface is smaller. Electric field lines which normally end on the central disc for the complete plane are deviated to the first ring in case of plane with a drilled plane. Even if some ions enter the hole, they are mainly collected on the walls and drained to the first ring. Thus, despite the fact that the measurements obtained on the first ring are explainable, they are not taken into account in the following.

3.4. Effect of the gas flow

To quantify the effect of the gas flow on the current density profile, $j(r)$ is estimated on the plane in the presence of a hole and a gas flow between 5 and 30 lpm. As $j(r)$ with gas flow has a similar evolution than Warburg's law, a \cos^m law is used to fit the measurements. A chi-square test is performed to evaluate the power "m" and the coefficient "k" from the experimental $j(r)$ profiles.

The discharge parameters used are those given above ($R_p=80$ mm, $d_{gap}=13$ mm) with a hole diameter of $D_{hole}=2$ mm. To have the same I-V characteristic, whatever the gas flow, the pressure is fixed in the discharge of 1020 mbar for all the gas flow rates.

In figure 6 are depicted the experimental data obtained with the gas flow rates of 5 and 30 lpm and for both Trichel ($V=9$ kV) and Corona ($V=17$ kV).

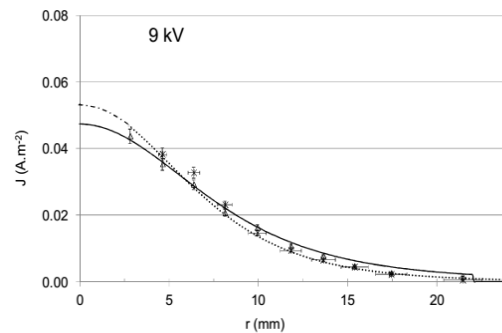
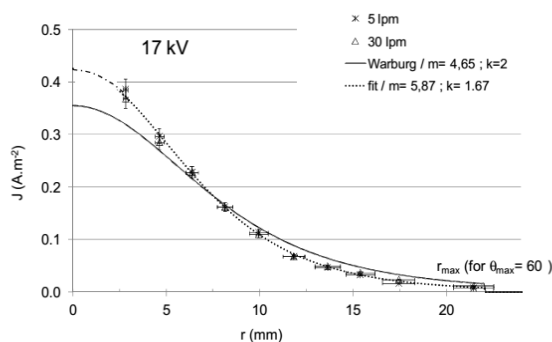


Figure 6: The ion current density profiles measured at 9 kV (dashed line) and calculated from Warburg's law with the negative polarity ($m=4.65$; full line).

As for the polarized ring (cf. §3.2), the current density in the presence of a gas flow is higher in the first four rings and lower for the others than without gas flow.

A higher power "m" (5.87 instead of $m=4.65$) and a smaller coefficient "k" ($k=1.67$ instead of $k=2$) are estimated. These fits can be extrapolated above the hole leading to higher axial current density ($j(0)$) with the flow. However, if these results are coherent with ion current measured downstream the hole (not presented here), the ion density current profile is probably different above the hole.

Moreover, current density profiles obtained with 5 to 30 lpm are similar. The evolution of the current density on the plane occurs mainly below 5 lpm. The evolution of the power "m" and the coefficient "k" of the Warburg's law versus the gas flow rate are plotted in Figure 7 for a voltage of 17 kV. The same evolution is measured at 9 kV.

The power "m" increases with the gas flow when the coefficient "m" decreases until a critical flow rate " Q_c " smaller than 5 lpm. Both of these factors saturate for higher gas flow rate until 30 lpm. This critical flow rate is more probably a critical velocity which depends mainly on the ion density.

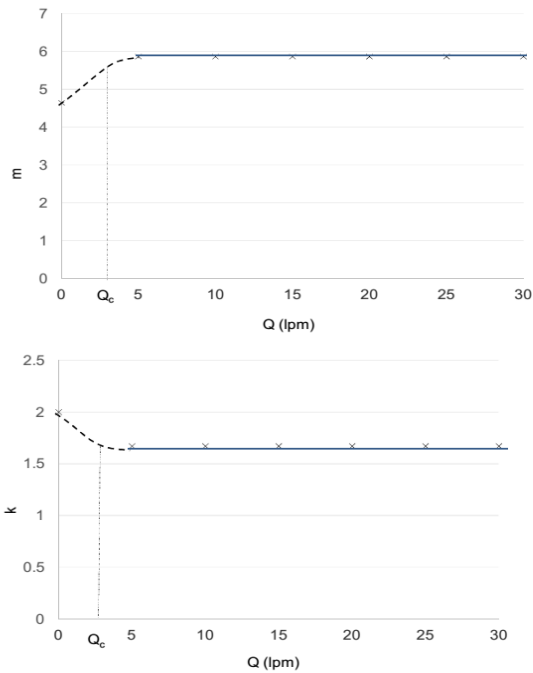


Figure 7: Evolution of the power “m” and the coefficient “k” with gas flow rate

4. Discussion

The current density profiles measured with gas flow are narrower than the one obtained without flow. Assuming ion with a single mobility μ (, the ion current density on the plane is given by $\vec{j} = N_i \cdot \mu \cdot \vec{E} \cdot \vec{n}$ with N_i , the ion density, μ the mean ion mobility and \vec{n} a unit vector normal to the surface. The ion current density is thus the product of the axial component of the electric field above the plane by the ion density. Since the axial electric field is the sum of both the Laplace and the space charge fields, the increase of the ion current density necessarily results from an ion confinement close to the central axis, increasing both the total electric field and the ion densities.

This ion confinement can be explained by three hypothesis. The first one concerns the hydrodynamic transport of ion by advection due to the gas flow as already observed and modelled [14]. The hydrodynamic confinement probably occurs at the vicinity of the hole. Actually, the mean gas velocity in the hole lies between 25 to 150 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ in the gas flow range of 5 to 30 lpm. At the vicinity of the hole, the gas velocity reaches a few $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ which is comparable to the radial ion velocity. The effect of the gas flow at the vicinity of the point

is negligible with gas velocity ($<1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) much lower than ion velocities ($> 100 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$).

The second hypothesis is related to the opposite direction of the electric wind sweeping over the plane from the centre to the walls, while the gas flow has an opposite direction. Then, vortexes are probably induced close to the hole that affects the ion distribution in the gap, as already observed and modelled in [18].

The third hypothesis is the effect of ion draining into the hole. As a result, despite an increase of the mean ion density in the central part of the gap, the reduction of the ion density just above the hole induces a local reduction of the radial electric field close to the symmetry axis. This could account for a lower radial drift of ions above the plane and the related modification of the current density profiles.

Finally, the current density profile evolves with the gas flow until a critical flow rate “ Q_c ” and saturates for higher flow rates. This can be explained by the ion confinement on and close to the central symmetry axis. Actually, the increase of the ion density around the hole is necessarily limited since higher space charge enhances radial electrostatic repulsions. Hence, once the critical space charge is reached, higher flow rates than the critical flow rate can not affect anymore the ion current density profile.

5. Conclusions

To evaluate the effects of a gas flow on the ion current distribution on the earthed plane, an experimental setup has been developed. The experimental setup is first validated with a complete plane and without gas flow by comparison with Warburg’s law. No effect of a 2 mm diameter hole on ion current density profile has been measured for $r > 1.8 \text{ mm}$. This seems to show that the modification of the electric wind is negligible. Finally, the effect of the gas flow is studied in the flow rate range 5 to 30 lpm. It has been shown that the gas flow affects the current density profiles. The ion current density is higher for the first rings and lower for the last ones. This is due to ion confinement to the central axis. Moreover, the current density profiles obtained in this gas flow range are sensibly similar, which means that the effect of the gas flow is effective in the flow range 0 to 5 lpm. Ion confinement to the central axis is favourable in terms of ion source as higher ion current enters the hole and can be extracted.

References

- [1] P. Intra, N. Tippayawong, Progress in unipolar corona discharger designs for airborne particle charging: A literature review. *Journal of Electrostatics*, 67 (2009) 605–615.
- [2] G.Biskos, K. Reavell, N. Collings, Electrostatic Characterisation of Corona-wire Aerosol Chargers, *J. Electrostatics*, 63 (2005) 69–82.
- [3] M. Alonso, F. J Alguacil, Effect of ion and particle losses in a charger on reaching a stationary charge distribution *JAS*, 34 (2003) 1647-64.
- [4] A. Marquard, J. Meyer, G. Kasper Characterization of unipolar electrical aerosol chargers-Part I: A review of charger performance criteria, *JAS*, 37-9 (2006) 1052-68.
- [5] K.T Whitby, Generator for Producing High Concentrations of Small Ions. *Rev. Sci. Instrum.*, 32 (1961) 1351-1355.
- [6] R. S. Sigmond, Simple approximate treatment of unipolar space-charge dominated coronas: the Warburg law and the saturation current. *J. Appl. Phys.* 53 (1982) 891-898.
- [7] Warburg E., Uber die spitzenentladung. *Wied. Ann.* 67 (1889) 69 83.
- [8] Yo Kondo and Y. Miyoshi, Pulseless Corona in Negative Point to Plane Gap, *Jpn. J. Appl. Phys.* 17 (1978) 643-649.
- [9] A. Goldman, E.O. Selim, R.T. Waters, Current distribution in the negative corona discharge in air, *Proceedings in the fifth GD, Liverpool* (1978) 87-91.
- [10] M. Robinson, Movement of air in the electric wind of the corona discharge *AIEE Trans.* 80 (1961) 143–50
- [11] A. Goldman, M. Goldman, J.E. Jones, On the behaviour of the planar current distribution in the pulseless regime of negative DC point-plane coronas in air. In *Proc. Tenth Int. Conf. on Gas Discharges and Applications* (1992), Swansea, 270-273.
- [12] Y. S.Akisev, M.E.Grushin, V. B.Karal'nik, I.V.Kochetov, A. E.Monich, A.P. Napartovich, N.I. Trushkin, Evolution of the Radial Structure of a Negative Corona during its Transformation into a Glow Discharge and a Spark Plasma Physics Reports, Vol. 29, No. 2 (2003) 176–186.
- [13] K. Adamiak, P. Atten, Simulation of corona discharge in point–plane configuration *Journal of Electrostatics* 61 (2004) 85–98.
- [14] M. Quast, N.R. Lalic, Measuring and Calculation of Positive Corona Currents Using the COMSOL Conference (2009) Milan.
- [15] T. E. Allibone, J. C. Saunderson, Corona at very high direct voltages. V. Corona in rod/plane gaps. In *Sixth Int. Symp. on High Voltage Engineering (ISH)*, New Orleans, (1989) Paper 22.02.
- [16] J. E. Jones A theoretical explanation of the laws of Warburg and Sigmond. *Proc. R. Soc. Lond. A* 453 (1997) 1033-1052
- [17] V. Amoroso, F. Lattarulo An improved graphical method to explain some Warburg law deficiencies *Journal of Electrostatics* 51-52 (2001) 307-312.
- [18] K. Adamiak and P. Atten, Numerical Simulation of the 2-D Gas Flow Modified by the Action of Charged Fine Particles in a Single-Wire ESP, 6th Conference of the « Société Française d'Electrostatique », Paris & Gif-sur-Yvette, 8-9 juillet 2008 (2008) 188-193

Résumé : le but est de développer un chargeur d'aérosols submicroniques à décharge couronne pour la mesure de concentration atmosphérique (10^3 - 10^5 cm^{-3}) avec un temps de réponse de 100 ms.

Deux sources d'ions, pointe-trou et fil-fente ont été caractérisées. L'augmentation du flux d'ions extrait en post-décharge par confinement EHD des ions tant dans l'espace inter-électrodes que dans l'extracteur a été mis en évidence.

L'étude expérimentale de deux configurations de mélange, concentrique et face-à-face, a d'abord permis de confirmer la loi de charge des aérosols par diffusion d'ions qui dépend du diamètre des particules et du produit $N_i t$, avec N_i , la densité d'ions et t , le temps de charge. *L'originalité de ce chargeur repose sur l'hétérogénéité des densités d'ions unipolaires ($N_i^0 > 10^9 \text{cm}^{-3}$) requises pour compenser le temps de charge inférieur à 50 ms. Dans ces conditions hétérogènes, nous avons montré que la taille et la dynamique de charge qui en dépend, contrôlent la trajectoire de l'aérosol.*

Les différents chargeurs ont ensuite été comparés selon les conditions de fonctionnement, principalement en termes de charge maximale et pertes minimales. Dans le chargeur retenu (source d'ions pointe-trou et mélange concentrique), les relations charge/mobilité et les pertes en fonction du diamètre d'aérosol ont ensuite été caractérisées. Nous avons montré la linéarité du courant de particules chargées avec la concentration qui permet l'inversion de données.

Le système préliminaire de mesure comprend le chargeur, le séparateur et la mesure du courant répond aux objectifs de l'étude en termes de limite de détection en concentration ($< 10^3$ cm^{-3}) et de temps de réponse (< 100 ms).

Nous avons donc démontré la faisabilité d'un système de mesure de concentration d'aérosol atmosphérique à 10 Hz, à l'aide d'un chargeur à décharge couronne, sous réserve d'améliorer le pouvoir de séparation. En outre, aux vues des pertes d'aérosol négligeables et de l'abaissement de la limite de charge partielle, le chargeur développé est compatible avec d'autres applications.

Abstract: the goal is to develop an aerosol charger based on a corona discharge for atmospheric concentration measurements (10^3 - 10^5 cm^{-3}) within a response time of 100 ms.

Two ion sources, point-to-hole and wire-to-slit have been characterized. The increase of the ion flow in the post-discharge by EHD ion confinement in both the discharge gap and the hole has been shown.

At first, using an experimental survey driven in two mixing configurations, concentric and face-to-face, we have confirmed the aerosol diffusion charging law which depends on aerosol diameter and $N_i t$ product, with N_i , the ions concentration and t , the charging time. *Thus, the originality of this charger relies on the very high heterogeneity of unipolar ion densities ($N_i^0 > 10^9 \text{cm}^{-3}$) required to compensate the charging time of 50 ms. In these conditions, we have shown that aerosol diameter and the charging dynamic (which depends also on the diameter) control the aerosol trajectory.*

The chargers have, next, been compared in different operating conditions, mainly in terms of the maximal charging and the minimal losses. In the chosen charger (point-to-hole ion source and concentric mixing), the relations charge/mobility and losses according to diameter have been characterized. We have also shown the linearity of the charged particles current with the aerosol concentration which allows the current-concentration data inversion

The preliminary measurement system composed by the charger, the separator and the particle current measurements, satisfies the objectives of the study in terms of the concentration detection limit (10^3 cm^{-3}) and the response time (100 ms).

We have thus shown the feasibility of an atmospheric aerosol concentration measurement system at 10 Hz using a corona discharge charger provided that the separation power is improved. Furthermore, knowing that aerosol losses are negligible and the lower limit of the partial charging, the developed charger is adaptable with other application

