

**T H E S E**

**PRESENTEE**

**A L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE  
PARIS 6**

**POUR OBTENIR**

**LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES**

par

**Siméon FONGANG**

**DETERMINATION DE LA GRANULOMETRIE DE L'AEROSOL  
ATMOSPHERIQUE ULTRA - FIN**

Soutenu le 10 mai 1978, devant le jury composé de :

<b>MM. M. GARNIER</b>	<b>Président</b>
<b>J. BARAT</b>	
<b>J. BRICARD</b>	
<b>D. DUGUE</b>	<b>Examineurs</b>
<b>J. PRADEL</b>	
<b>A. RENOUX</b>	
<b>G. ARNAUD</b>	

Je remercie Monsieur le Professeur GARNIER qui s'est intéressé à ce travail et qui a bien voulu présider le Jury chargé de le juger.

Monsieur le Professeur BRICARD qui m'a fait l'honneur de diriger ces recherches au Laboratoire de Physique des Aérosols (Université Pierre et Marie Curie, Paris VI), et Monsieur PRADEL, Chef du Service Technique d'Etudes de Protection, Département de Protection au CEA, qui m'a accueilli dans ses laboratoires, voudront bien trouver ici l'hommage de toute ma reconnaissance.

Je remercie Monsieur le Professeur BARRAT qui a manifesté son intérêt pour ce travail et accepté d'en prendre la responsabilité scientifique et administrative.

Je remercie aussi :

- Monsieur le Professeur RENOUX qui m'a donné de précieux conseils pour la rédaction de ce texte,

- Monsieur le Professeur DUGUE qui a bien voulu faire partie du Jury chargé de juger ce travail.

Mes remerciements vont également à Monsieur ARNAUD qui n'a pas ménagé son aide et ses conseils au cours de ce travail, en particulier pour les traitements mathématiques.

Je remercie enfin,

- Monsieur ZETTWOOG et Monsieur PAGES pour leurs conseils et leurs encouragements,

- Monsieur MADELAINE pour ses critiques tout au long de ce travail,

et, pour leur aimable collaboration,

- tous les chercheurs du Laboratoire de Physique des Aérosols, en particulier Monsieur CABANE,

- les chercheurs et techniciens du Laboratoire de Physique de l'Atmosphère de la STEPAM au CEN/FAR, en particulier Madame BOURBIGOT en microscopie électronique,

- Monsieur BELOT et tout le personnel du Centre de Mesures Atmosphériques de GUYANCOURT,

- Monsieur PAUGAM de la Faculté des Sciences de BREST,

- Mademoiselle QUINSAC et le Service de Documentation du DPr, CEN/FAR pour la réalisation technique de ce texte.

Thèse de DOCTORAT D'ETAT ès SCIENCES  
PHYSIQUE

Résumé de thèse

Thèse présentée par M. Siméon FONGANG  
Sous la direction de M. BARAT  
Sujet: Détermination de la granulométrie de l'aérosol  
atmosphérique ultrafin.

Après avoir passé rapidement en revue différentes techniques d'étude du spectre de dimension d'un aérosol, nous avons testé plusieurs méthodes de détermination de la granulométrie: microscope électronique, comptage électrique et batteries de diffusion. Un examen critique de ces méthodes nous a permis de choisir les batteries de diffusion et le compteur électrique comme moyens d'étude.

Des anomalies dans la forme des distributions obtenues à partir des mesures aux batteries de diffusion nous ont d'abord amené à faire des essais d'amélioration de la méthode de Maigné. Une nouvelle méthode de détermination des granulométries d'aérosols par traitement des données des batteries de diffusion a ensuite été proposée. Dans cette méthode, on part de l'équation de Twomey ; on détermine la fonction de distribution  $f(r)$  par intégration numérique et on en déduit les valeurs théoriques  $(n/n_0)_{th}$  des rapports des concentrations  $n_0$  et  $n$  à l'entrée et à la sortie des batteries telles que l'écart :

$$\left(\frac{n}{n_0}\right)_{exp} - \left(\frac{n}{n_0}\right)_{th}$$

soit minimum. La minimisation est effectuée par la méthode des gradients conjugués. Le test de cette nouvelle méthode de calcul avec un aérosol d'uranine, puis par simulation théorique de granulométries unimodales et bimodales nous a montré qu'elle est satisfaisante dans les deux cas.

La nouvelle méthode d'intégration a, comme la méthode de Maigné l'inconvénient de nécessiter un temps de calcul d'autant plus long que les conditions de départ des approximations sont loin des conditions réelles dans l'aérosol étudié. Dans les deux cas, la précision des résultats diminue quand la taille

des particules augmente puisqu'alors leur coefficient de diffusion variant peu avec leur grosseur, leur sélectivité diminue. Notre méthode a cependant l'avantage sur celle de Maigné de permettre une extrapolation aux deux extrémités du spectre de dimension, de supprimer les discontinuités constatées au passage d'un mode à l'autre dans la seconde méthode et de conduire à une probabilité unité d'explication du spectre quand la limite supérieure ( $d_{\max}$ ) est suffisamment grande.

La persistance des anomalies de distribution (faible proportion de fines particules) qui ne peuvent être expliquées ni par les méthodes de calcul, ni, comme nous l'avons montré à partir des calculs théoriques, par les pertes par diffusion-coagulation dans les conduites ou la sphère de stockage, nous a conduit à la mise en évidence des pertes de comptage des compteurs de noyaux de condensation. La réalité de ces pertes, qui dépendent d'ailleurs de la taille et de la nature des particules d'aérosols, a été confirmée d'abord par un contrôle théorique et expérimental du générateur d'aérosols utilisé, puis par l'étude de la réponse du CNC GE en fonction de sa détente.

En utilisant une courbe d'étalonnage du CNC en fonction des pertes de comptage, nous avons introduit dans les granulométries une correction de comptage en fonction du rayon des particules. Les anomalies n'existent plus dans les spectres ainsi corrigés.

L'étude de l'aérosol atmosphérique dans différents sites de mesure nous

a. montré que :

1°) dans l'intervalle de diamètre compris entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$  cm, on obtient un assez bon accord entre l'analyseur électrique d'aérosols et notre méthode; mais cet accord, presque parfait pour des distributions unimodales, est moins satisfaisant quand il existe plusieurs modes dans cette région ou quand l'aérosol contient un fort pourcentage de particules de diamètre supérieur à  $10^{-5}$  cm.

Pour  $d < 10^{-6}$  cm, l'analyseur électrique ne donne que des valeurs indicatives, peu stables et peu fiables. Au dessus de  $10^{-5}$  cm, l'AEA ne permet pas, comme nous l'avons vu avec les exemples de Guisseny par temps brumeux, de suivre les

déplacements du maximum dans cette région.

2°) en atmosphère relativement non polluée, la distribution dimensionnelle de l'aérosol est unimodale ; une pollution particulaire locale et plus ou moins instantanée conduit à une bimodalité, qui tend rapidement à disparaître dès que cesse la production de noyaux.

3°) dans une atmosphère fortement polluée, (zone urbaine par exemple), la granulométrie est généralement bimodale, avec les maxima respectifs dans les intervalles  $2 \cdot 10^{-7} - 10^{-6}$  cm pour les fines particules et  $2 \cdot 10^{-6} - 10^{-5}$  cm pour les plus grosses. Une forte production de très fines particules ( $r \approx 10^{-7}$  cm) tend à faire disparaître le maximum situé vers  $10^{-5}$  cm au bénéfice de celui situé vers  $10^{-6}$  cm.

La persistance de fortes proportions de fines particules et et d'une certaine bimodalité à Paris pendant la nuit nous a amené à douter de son origine purement photochimique et à étudier des aérosols de combustion. Les distributions alors obtenues pour un gaz d'échappement automobile, un gaz de cheminée domestique et une fumée de tabac sont bimodales, les deux modes étant situés vers  $10^{-7}$  cm et  $10^{-6}$  cm de rayon.

En conclusion, la forme de la granulométrie de l'aérosol atmosphérique en zone urbaine serait imposée dès sa formation. Les processus photochimiques et la coagulation n'auraient alors pour effet qu'une modification de cette distribution.

# S O M M A I R E

---

	page
INTRODUCTION.....	1
 CHAPITRE I : ORIGINE DE L'AEROSOL A ETUDIER	
1. PRODUCTION NATURELLE D'AEROSOLS.....	5
1-1. Erosion éolienne.....	5
1-2. Les volcans.....	5
1-3. Mers et Océans.....	6
1-4. Les plantes.....	6
1-5. Incendies de Forêts et Feux de brousse.....	6
2. PRODUCTION ANTHROPOGENIQUE D'AEROSOLS.....	8
2-1. Par des actions mécaniques.....	8
2-2. Par des réactions photochimiques.....	8
2-3. Actions chimiques.....	8
 CHAPITRE II : MOYENS D'ETUDE	
1. PRINCIPE ET APPAREILLAGE.....	9
1-1. Etude des grosses particules.....	9
1-2. Etude des particules ultra-fines.....	9
1-2-1. Etude par microscopie électronique....	10
1-2-1-1. Prélèvement par précipitateur thermique	10
1-2-1-2. Prélèvement par membranes.....	11
1-2-1-3. Caractéristiques du microscope utilisé.....	13
1-2-2. Etude par le compteur électrique.....	14
1-2-2-1. Charge des particules.....	14
1-2-2-2. Analyse des mobilités.....	15
1-2-2-3. Compteur électrique de Whitby.....	18
1-2-3 Etude par les batteries de diffusion.....	19
1-2-3-1. Aérosol non dispersé.....	20
1-2-3-2. Aérosol polydispersé.....	
a) Méthode de Twomey.....	24
b) Méthode de Businger et Golub.....	28
c) Méthode d'Ikebe.....	31
d) Méthode de Maigné.....	32
1.2.3.3. Montage des batteries de diffusion..	33
1.3. Paramètres annexes.....	37

2. SITES DE MESURE.....	38
2-1. Paris.....	39
2-2. Brest.....	39
2-3. Guisseny.....	40
2-4. Guyancourt.....	41

### CHAPITRE III : RESULTATS PRELIMINAIRES ET CHOIX DES MOYENS D'ETUDE

1. ETALONNAGES.....	42
1-1. Sondes de température et rotamètres.....	42
1-1-1. Température.....	42
1-1-1. Rotamètres.....	43
1-2. Compteur de noyaux.....	43
1-3. Compteur électrique.....	46
2. RESULTATS PRELIMINAIRES.....	48
2-1. Résultats du microscope électronique.....	49
2-2. Résultats du compteur électrique.....	50
2-3. Résultats des batteries de diffusion.....	52
3. CHOIX DES MOYENS D'ETUDE.....	60
3-1. Réserves sur les techniques d'étude.....	60
3-1-1. Microscope électronique.....	60
3-1-2. Compteur électrique.....	61
3-1-3. Batteries de diffusion.....	61
3-2. Choix des techniques d'étude.....	62
3-2-1. Choix .....	62
3-2-2. Amélioration de la méthode de calcul .....	62
a) Précision des calculs.....	64
b) Ridge régression.....	64

### CHAPITRE IV : NOUVELLE METHODE DE DETERMINATION DE LA GRANULO- METRIE D'UN AEROSOL AU MOYEN DES BATTERIES DE DIFFUSION

1. PRINCIPE .....	69
2. METHODE .....	70
2-1. Intégration par la méthode de Simpson ...	70
2-2. Minimisation par la méthode des gradients conjugués.....	71
2-3. Pratique de l'intégration .....	75

3. PRECISION ET STABILITE .....	77
3-1. Précision .....	77
3-2. Stabilité de la méthode .....	79
1°) Influence du débit maximum .....	79
2°) Influence des erreurs sur $n/n_0$ .....	79
3-3. Test de la méthode avec un aérosol connu	81
3-4. Comparaison .....	83
1°) Simulation d'une granulométrie .....	83
2°) Résultats comparés d'une mesure .....	83

## CHAPITRE V : DES PERTES DANS LES CONDUITES AUX PERTES DE COMPTAGE

I. CALCUL DES PERTES DANS LES CONDUITES ET DANS LA SPHERE	87
I-1. Pertes dans les conduites .....	87
I-1-1. Pertes dans le tuyau $L_1$ .....	87
I-1-2. Pertes dans le tuyau $L_2$ .....	90
I-2. Pertes dans la sphère .....	94
I-2-1. Captation sur les parois .....	94
1°) Sédimentation par gravité .....	94
2°) Captation par diffusion .....	96
I-2-2. Pertes par coagulation .....	99
Z. PERTES DE COMPTAGE .....	106
Z-1. Mise en évidence des pertes .....	106
Z-2. Contrôle du générateur d'aérosols .....	108
Z-2-1. Contrôle par diffusion .....	108
Z-2-2. Contrôle par microscopie électronique	109
Z-3. Décharge des particules .....	110
Z-4. Aérosol métallique .....	110
Z-5. Causes probables des pertes de comptage ....	113
Z-5-1. Nature des noyaux .....	113
Z-5-2. Baisse de sursaturation .....	114

## CHAPITRE VI : RESULTATS ET INTERPRETATION

1. CORRECTION DES RESULTATS .....	117
1-1. Principe de la correction .....	117
1-2. Exemples de correction .....	121
2. RESULTATS .....	128
2-1. Résultats de Paris .....	128
2-1-1. Avec les batteries de diffusion .....	128
2-1-2. Résultats de l'analyseur électrique..	130
2-2. A Guyancourt .....	131
2-2-1. Aux batteries de diffusion .....	131
2-2-2. Avec le compteur électrique .....	132
2-3. Mesures de Brest .....	132
2-4. Résultats de Guisseny .....	133



2-4-1. Résultats des batteries de diffusion..	134
- Influence des marées	
- Influence de la brume	
- Influence de la direction du vent	
2-4-2. <u>Résultats du compteur électrique</u> .....	137
3. ETUDE D'UN AEROSOL DE COMBUSTION .....	142
3-1. Montage expérimental .....	143
3-2. Pratique d'une mesure .....	143
3-3. Résultats .....	144
CONCLUSION .....	150
<u>ANNEXE</u> .....	155
BIBLIOGRAPHIE.....	174
FIGURES.....	

## INTRODUCTION

On appelle "aérosol atmosphérique" un ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans l'air. Son domaine d'existence se situe entre  $10^{-7}$  cm et  $10^{-1}$  cm de rayon. Cependant, les particules de diamètre  $d$  supérieur à  $10^{-2}$  cm restent peu dans l'atmosphère. Elles précipitent rapidement par gravité et ne se maintiennent parfois dans l'air que par des mouvements convectifs. Les particules de quelques millimètres sont surtout des gouttes de pluie ; entre  $1 \mu\text{m}$  et quelques dizaines de microns, on trouve les particules produites par des réactions mécaniques diverses. Au-dessous de  $10^{-5}$  cm, ce sont les noyaux d'Aitken. L'aérosol atmosphérique joue un rôle important dans plusieurs domaines :

- absorption et diffusion des radiations solaires
- formation des brumes, brouillard et pluie (102)
- prévision numérique (90)
- santé (46, 21)
- contrôle de pollution.

Notre travail a pour but l'étude granulométrique de la composante fine ( $d < 3 \cdot 10^{-5}$  cm) de l'aérosol atmosphérique, c'est-à-dire de la répartition de ses particules en fonction de leur taille. Le domaine d'existence de cet aérosol étant vaste, la plupart de ses propriétés physiques changent quand

on passe des plus fines aux plus grosses particules. Dès lors, on peut difficilement envisager d'utiliser la même méthode de mesure pour étudier tout le spectre granulométrique.

Pour des diamètres supérieurs à  $10^{-5}$  cm, la granulométrie de cet aérosol atmosphérique a été, pendant des années, représentée par la formule de JUNGE (55) qui exprime la continuité de la distribution dans le domaine considéré :

$$\frac{dn}{dL_n r} = C r^{-\beta}$$

où

$dn$  = concentration de l'aérosol dans l'intervalle  $dL_n r$

$n$  = concentration totale qui varie entre quelques centaines de milliers de particules. $\text{cm}^{-3}$  en milieu urbain et environ 1000 particules. $\text{cm}^{-3}$  en mer (54)

$C$  = constante qui dépend de  $n$

$\beta$  = coefficient compris entre 3 et 5.

Pour exprimer le même concept de continuité dans la distribution des particules, FRIEDLANDER (34) lança l'idée de l'équilibre entre la production et la disparition de l'aérosol par différents mécanismes. Cette idée fut décrite, par la suite, comme une théorie d'autorégulation de la granulométrie. Avec le développement des techniques d'étude, on s'est vite aperçu que la formule de JUNGE n'est pas applicable à tout le domaine  $10^{-5}$  -  $10^{-3}$  cm. Plusieurs résultats (4, 5) montrent, en effet, que la distribution peut présenter un maximum entre  $5 \cdot 10^{-5}$  cm et  $10^{-4}$  cm. Donc, même dans sa zone de validité, la formule de JUNGE ne peut permettre de trouver la granulométrie de l'aé-

rosol atmosphérique qu'il faut alors déterminer expérimentalement.

Le domaine de dimensions supérieures à  $3 \cdot 10^{-5}$  cm de diamètre a été bien étudié depuis longtemps, en particulier par microscopie optique ou par comptage photoélectrique. Par contre, pour des tailles inférieures à  $3 \cdot 10^{-5}$  cm, les travaux sont beaucoup plus récents puisque, avant le développement du microscope électronique et des compteurs électriques, on ne pouvait y accéder. Le seul moyen qui, jusqu'à une date récente, permettait l'étude granulométrique de l'aérosol, sans le modifier, jusqu'à des diamètres inférieurs à  $3 \cdot 10^{-5}$  cm est la méthode photonique de TURPIN (101) qui baisse le seuil de détection à  $7 \cdot 10^{-6}$  cm. Au-dessous de ce seuil, et pratiquement pour  $d < 10^{-5}$  cm, la granulométrie est encore mal connue. L'objet de notre étude est la détermination de la distribution des particules dans cette zone, en particulier par le moyen des batteries de diffusion. Le choix des batteries de diffusion fait suite à une étude critique de quelques granulométries obtenues par microscopie électronique et comptage électrique.

Au cours du travail que nous présentons ici, des anomalies dans la forme des spectres obtenus au moyen des batteries de diffusion nous ont conduit à la mise en évidence des pertes de comptage des compteurs de noyaux de condensation (CNC) et à leur application pour la correction des distributions expérimentales. Après avoir utilisé la méthode de MAIGNE (64) de détermination des granulométries d'aérosols à partir

des données des batteries de diffusion par intégration numérique de l'équation de TWOMEY (105), nous l'avons améliorée et mis au point avec ARNAUD (1) une nouvelle méthode d'intégration.

Les résultats obtenus montrent que la granulométrie de l'aérosol atmosphérique est généralement plurimodale. En zone urbaine, on a deux maxima pratiquement permanents vers  $10^{-7}$  cm et  $10^{-6}$  cm de rayon. L'aérosol marin en région côtière est souvent pratiquement unimodal (diamètre moyen  $d_g \approx 2 \cdot 10^{-5}$  cm), mais la pollution par les algues peut créer un second mode vers  $d_g = 3 \cdot 10^{-7}$  cm.

Nous avons, enfin, étudié des aérosols de combustion : un gaz d'échappement automobile, un gaz de cheminée d'une chaudière à mazout et une fumée de tabac.

Après avoir indiqué rapidement quelques sources de formation d'aérosols et décrit de façon assez succincte les différents moyens utilisés pour cette étude, nous présenterons brièvement les sites où les mesures ont été effectuées. Nous donnerons, ensuite, des résultats expérimentaux avant de décrire successivement la nouvelle méthode d'intégration et les anomalies de comptage. Nous terminerons par une étude d'aérosols de combustion.

## CHAPITRE I

### ORIGINE DES AEROSOLS

Les sources de production d'aérosols atmosphériques sont diverses. Elles peuvent être naturelles ou artificielles.

#### 1. PRODUCTION NATURELLE D'AEROSOLS.

Les sources naturelles les plus importantes d'aérosols sont : l'érosion, les volcans, les mers et les océans, les incendies de forêt.

##### 1-1. Erosion éolienne.

L'érosion éolienne, dont les effets sont sensibles surtout dans les régions désertiques, donne naissance à des poussières qui peuvent parcourir de très longs trajets dans l'atmosphère (16).

##### 1-2. Volcans.

Les volcans produisent à la fois des particules, dont certaines peuvent atteindre la stratosphère à des milliers de kilomètres de leur point source (88), et des gaz, tels  $H_2S$  et  $SO_2$ , dont les transformations photochimiques condui-

sent à des particules ultrafines.

#### 1-3. Mers et Océans.

Les mers et les océans produisent également des aérosols, soit par "bubbling", soit à partir de certaines algues (30, 73) qui peuvent constituer, en zone côtière, la source la plus active de matière en suspension dans l'air.

#### 1-4. Plantes.

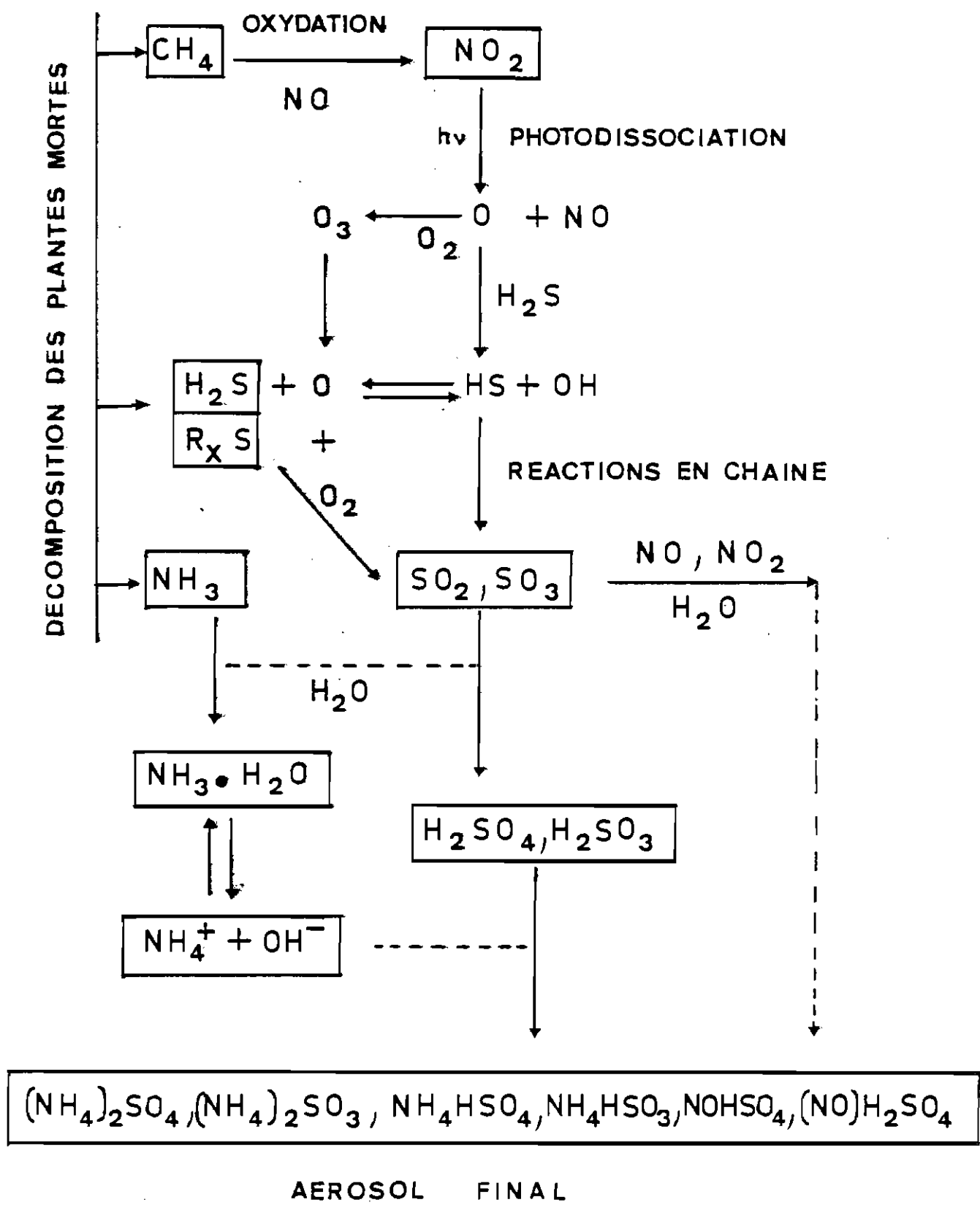
En plus des pollens qu'elles émettent, les plantes et les forêts contribuent à la création d'aérosols atmosphériques, soit à partir des terpènes, soit par réactions photochimiques des gaz provenant de ces plantes. Le tableau 1 résume certains processus de réaction actuellement admis (6, 11, 10 86) (44, 71, 84). Dans ce tableau,  $R_x$  désigne un radical hydrocarboné.

#### 1-5. Incendies de forêt et feux de brousse.

Les incendies de forêt et les feux de brousse constituent encore, en Afrique tropicale par exemple, une source importante de l'aérosol atmosphérique naturel.

Certaines poussières en suspension dans l'air peuvent, enfin, être des micrométéorites provenant de la haute stratosphère.

Tableau 1-1 : REACTIONS PHOTOCHIMIQUES





## 2. PRODUCTION ANTHROPOGENIQUE D'AEROSOLS.

Essentiellement lié aux différentes activités de l'homme, ce mode de production est donc particulièrement important dans les zones fortement peuplées ou industrialisées. Il intervient suivant trois modes principaux : mécanique, photochimique et physico-chimique.

### 2.1. Actions mécaniques.

Ces actions mécaniques résultent de la construction des routes, de la construction ou de la démolition des bâtiments (3), de la circulation automobile.

### 2.2. Réactions photochimiques.

Les réactions photochimiques sur les gaz provenant des cheminées d'usines, des foyers domestiques ou des tuyaux d'échappement des véhicules à moteur sont une source importante de particules ultra-fines. Ces réactions sont, bien entendu, identiques à celles qui interviennent dans les phénomènes naturels.

### 2.3. Actions physico-chimiques.

Les actions physico-chimiques, comme la combustion dans les chaudières ou les moteurs automobiles, fournissent des particules de tailles variées.

## CHAPITRE II

### MOYENS D'ETUDE

#### 1. PRINCIPE ET APPAREILLAGE.

Avant de passer en revue les techniques que nous utiliserons pour l'étude de l'aérosol ultrafin, nous citerons, pour mémoire, celles qui sont employées dans le cas des grosses particules (diamètres supérieurs à  $3 \cdot 10^{-5}$  cm).

##### 1.1. Etude des grosses particules.

On peut déterminer la répartition en taille de très grosses particules par un procédé photographique (39).

Les impacteurs en cascade permettent d'obtenir des granulométries en nombre (microscope optique) ou en masse (pesées).

On peut également utiliser la détection photoélectrique basée sur l'analyse de la lumière diffusée, dans une direction donnée, par les particules éclairées (43, 66, 68). Dans ce domaine, les lasers (58) et les lidars (19, 82, 45, 67) sont de plus en plus utilisés et permettent de baisser le seuil de détection au-dessous de  $3 \cdot 10^{-5}$  cm. La méthode photonique de TURPIN (101) est également un grand progrès dans ces détecteurs photoélectriques.

## 1.2. Etude de l'aérosol ultra-fin.

Pour étudier les granulométries de particules dont les diamètres varient de quelques dixièmes de microns à quelques dizaines d'angströms, nous disposons de trois techniques : le microscope électronique, le compteur électrique et les batteries de diffusion couplées à un compteur de noyaux de condensation.

### 1.2.1. Microscope électronique.

Avant d'être examinées au microscope électronique, les particules sont captées, soit à l'aide d'un précipitateur thermique, soit sur membranes.

#### 1.2.1.1. Précipitateur thermique.

Le précipitateur thermique utilise le phénomène de thermophorèse (29, 107) suivant lequel les particules migrent d'une région chaude à une région plus froide. Dans cet appareil, la captation des aérosols s'effectue sur les grilles lors du passage de l'air, à faible débit ( $7 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$ ), à travers un conduit étroit dans lequel on établit un gradient thermique  $\Delta T$  perpendiculaire au flux d'aérosol, en chauffant électriquement un fil à la température de  $120^\circ\text{C}$ . Les différents travaux théoriques (29, 13, 26, 27, 28) montrent que l'expression de la vitesse thermophorétique dépend du nombre

de Knudsen (57) :

$$K_n = \frac{\lambda}{r} \quad (\text{II-1})$$

où

$\lambda$  est le libre parcours moyen des "molécules d'air"

et

$r$  le rayon des particules.

Pour les grosses particules ( $K_n \ll 1$ ), cette vitesse est une fonction de  $r$  ; mais, dans le domaine moléculaire, elle est indépendante du rayon (annexe 1).

#### 1.2.1.2. Prélèvements sur membranes.

Les membranes utilisées sont des filtres nuclépores, dont les pores sont obtenus en les soumettant à un flux de neutrons produits par la fission de  $^{235}\text{U}$  (94) dans un réacteur nucléaire, d'où une grande régularité dans la structure de ces pores.

Deux problèmes bien distincts sont à considérer ici : d'une part l'efficacité de captation des aérosols par les membranes au cours de l'aspiration de l'air atmosphérique, et d'autre part l'établissement de la granulométrie des particules captées. Ce dernier problème a été peu abordé ; mais l'efficacité de filtration a été étudiée théoriquement et expérimentalement par un grand nombre d'auteurs (8, 53, 78, 79, 91, 93, 96, 110).

a) L'efficacité de captation des membranes.

L'efficacité de la filtration par les membranes dépend de plusieurs facteurs (25) :

- L'impaction par inertie à la surface des membranes.
- L'effet de tamis qui est important lorsque le rayon  $r$  de la particule d'aérosol est supérieur ou égal au rayon  $r_1$  des pores. Cet effet est caractérisé par le nombre  $N_S = \frac{r}{r_1}$  ; pour  $N_S > 1$ , l'efficacité est théoriquement égale à 100 %.
- L'interception directe dans les pores qui a lieu lorsque le centre d'une particule de rayon  $r$  se trouve à la distance  $r$  des parois.
- La diffusion brownienne.
- Les charges électriques sur les particules ou les membranes et dont l'importance, malgré les études de NATANSON (70) GELLESPIE (38) et WALKENHORST (108), n'est pas bien connue.
- Les forces de Van der WAALS qui peuvent jouer un rôle dans les pores, comme l'on montré les mesures de TABOR (98).
- La captation par gravité, étudiée en particulier par NATANSON (70) et THOMAS (99), mais qui est négligeable pour les fines particules.
- Les effets de température et de pression ont également été étudiés par plusieurs auteurs (78, 94).

Si les particules d'aérosol ont un rayon  $r$  inférieur à celui  $r_1$  des pores, l'efficacité de filtration dépendra surtout

de la diffusion, de l'impaction et de l'interception directe, les effets des différents autres mécanismes étant alors négligeables. Soient respectivement  $E_I$ ,  $E_R$  et  $E_D$  les efficacités de captation par impaction, interception directe et diffusion (annexe 2). L'efficacité totale a été mise par SPURNY (91) sous la forme :

$$E = E_I + (1-E_I) \left[ E_D + E_R \Theta^{(1-N_S)} \right] \quad (\text{II-2})$$

avec :

$$\begin{aligned} \Theta &= 0.6 \\ N_S &= r/r_1 \end{aligned} \quad (\text{II-3})$$

où  $r$  est le rayon des particules et  $r_1$  celui des pores de la membrane.

#### b) Granulométrie.

Pour établir la granulométrie d'un aérosol à partir des prélèvements sur membrane, on fait une réplique de celle-ci (Fig. II-1). C'est l'observation, au microscope électronique, de cette réplique qui permet ensuite de trouver la distribution des particules en fonction de leur taille (15).

#### 1.2.1.3. Caractéristiques du microscope utilisé.

- Le grandissement maximum du microscope électronique utilisé est de 400 000.

- Les grilles ont 3 mm de diamètre, avec des mailles de 85  $\mu\text{m}$ .

- Quand aux membranes nuclépores, elles ont une épaisseur de 10  $\mu\text{m}$  et une porosité de 0.08 ; le diamètre de leurs pores est égal à  $4 \cdot 10^{-5}$  cm. L'aspiration de l'aérosol se fait à 25 l/min, le diamètre efficace du filtre étant égal à 3 cm.

### 1.2.2. Compteur électrique.

Reprenant une idée émise une quarantaine d'années plus tôt par ROHMAN (111), WHITBY (111) a construit le premier analyseur électrique de granulométrie d'aérosol.

Dans ce type d'appareil, l'aérosol est d'abord chargé électriquement, de telle sorte que la charge des particules soit une fonction monotone de leur rayon. On mesure ensuite leur mobilité et on en déduit la distribution en taille.

#### 1.2.2.1. Charge électrique.

L'aérosol est chargé par effet couronne : une pointe métallique, portée à un potentiel de l'ordre de 4 kV, produit un nuage d'ions unipolaires de densité  $N_1$ . Si des particules de diamètre  $d$  sont maintenues pendant un temps  $t$  dans ce nuage, elles acquièrent, par diffusion des ions,  $n_p$  charges élémentaires. Plusieurs approches permettent de déterminer  $n_p$  ; nous dirons simplement qu'il peut se déduire de l'équation donnée par BRICARD (12) :

$$\frac{d n_p}{dt} = \frac{\pi N_i d^2 \bar{c} \frac{n_p e^2}{4KT} \exp \frac{-n_p e^2}{KT (d/2 + \Delta)}}{n_p \frac{e^2}{KT} + \frac{C}{16D_i} d^2 \left[ 1 - \exp \frac{-n_p e^2}{KT (d/2 + \Delta)} \right]} \quad (\text{II-4})$$

avec :

$$\Delta = \frac{1}{\frac{3}{2} d \lambda} \left( \frac{d}{2} + \lambda \right)^3 - \left( \frac{d^2}{4} + \lambda^2 \right)^{3/2} - \frac{d}{2} \quad (\text{II-5})$$

avec :

$\bar{c}$  = vitesse d'agitation thermique

$e$  = charge élémentaire

$\lambda$  = libre parcours moyen

$K$  = constante de Boltzmann

$T$  = température absolue

$D_i$  = coefficient de diffusion des ions ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )

Pour  $N_i$  donné, le nombre de charges  $n_p$  acquises par une particule pendant un temps  $t$  dépend donc de sa taille.

WHITBY (111) montre que  $n_p$  peut se mettre sous la forme :

$$n_p = \frac{3\pi d \mathcal{E}}{\eta C e} \quad (\text{II-6})$$

où  $\eta$  représente toujours la viscosité de l'air,  $\mathcal{E}$  la mobilité des particules et  $C$  le coefficient de correction de CUNNINGHAM (23).

#### 1.2.2.2. Analyse des mobilités - Granulométrie.

Les particules chargées, de rayon  $r$ , passent à la vitesse  $v_i$  à travers un champ électrique  $E$  établi entre les armatures d'un condensateur cylindrique, l'armature intérieure  $C'_1$  est



portée au potentiel  $V$ ; l'armature extérieure  $C'_2$  est à la masse (fig. II-2). Pour une vitesse donnée, l'abscisse  $x_i$  du point d'impact des particules sur la paroi  $C'_1$  dépend de leur mobilité  $B$ , donc de leur taille. On trouve dans ce cas (107) :

$$B = \frac{Q L_n(r_2/r_1)}{2\pi x_i V} F_c \quad (\text{II-7})$$

où  $Q$  est le débit total de l'air à analyser dans le cylindre, et  $F_c$  un facteur de correction tel que :

$$F_c = \frac{\frac{r_2}{2} + \left\{ \frac{Q_a r_1^2 + Q_c r_2^2}{4Q} \right\}^{1/2} - r_1^2}{r_2^2 - r_1^2} \quad (\text{II-8})$$

avec :

$r_1$  = rayon du cylindre intérieur

$r_2$  = rayon du cylindre extérieur

$Q_a$  = débit de l'air à l'entrée du nuage d'ions

$Q_c$  = débit d'air propre de dilution.

Pour  $E$  et  $v_i$  donnés seules, des particules de rayon supérieur à  $r_i$  arriveront sur le filtre  $F_e$ . La mesure du courant  $I$  correspondant permet de trouver la concentration  $n$  de ces noyaux dont on suppose qu'ils portent une charge unique :

$$n = \frac{I}{Qe} \quad (\text{II-9})$$

En réalité, comme le montrent les équations II-4 et

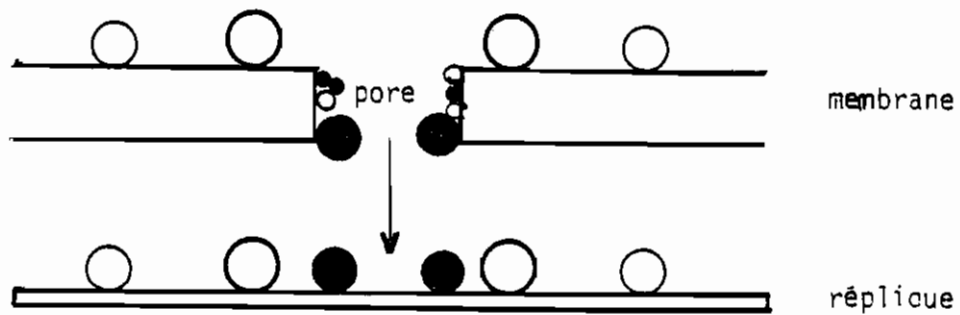
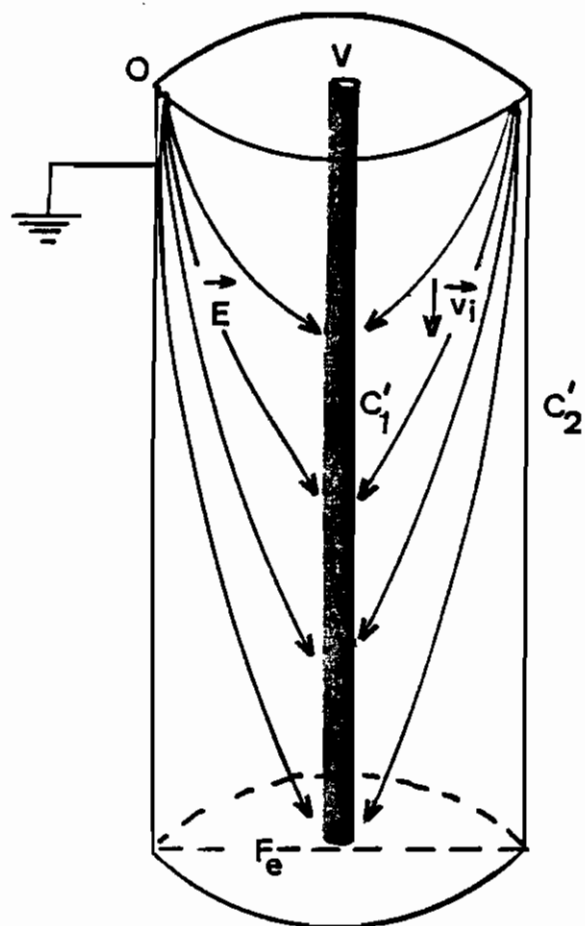


Fig. II-1 : REPLIQUE D'UNE MEMBRANE



$C_1'$  = cylindre intérieur       $C_2'$  = cylindre extérieur  
 $F_e$  = filtre       $E$  = champ électrique  
 $v_i$  = vitesse de la particule       $V$  = tension appliquée

Fig. II-2 : DEVIATION, PAR UN CHAMP ELECTRIQUE, DES PARTICULES CHARGEES

II-6, les particules de toutes les dimensions ayant été exposées pendant le même temps au nuage d'ions, ne peuvent toutes porter une seule charge. Il faudrait donc introduire un coefficient de correction pour tenir compte d'éventuelles charges multiples, ce que nous ne ferons pas, étant donné le coût des traitements numériques nécessaires.

Le seuil de détection de ce type d'appareil est limité par deux phénomènes :

1°) Les très fines particules chargées, qui ont de fortes mobilités, sont captées beaucoup plus rapidement par les parois ; si  $n_1$  est la concentration des particules chargées au point où elles se chargent, leur concentration  $n_2$  à la sortie est inférieure à  $n_1$ .

2°) La probabilité  $f$  de charge d'une particule varie avec la concentration  $N_i$  d'ions de charge :

$$f = 1 - e^{- (N_i t / (N_i t)_c )} \quad (\text{II-10})$$

où  $N_i t$  est le produit de la densité du nuage ionique par la durée  $t$  de charges et  $(N_i t)_c$  la valeur critique nécessaire pour que toutes les particules aient la probabilité 1 d'acquérir une charge élémentaire. La valeur de  $t$  dépend du débit à travers l'appareil, et des caractéristiques géométriques de ce dernier.

3°) D'autre part, pour une valeur donnée du produit  $N_1 t$ , la probabilité de charge dépend du rayon des particules, comme on peut le voir à partir de l'équation II-4. En régime moléculaire (nombre de Knudsen  $\lambda/r \gg 1$ ), le nombre  $n_p$  de charges portées par une particule de rayon  $r$  soumise, pendant un temps  $t$ , à un flux  $\Phi_I$  d'ions est :

$$n_p = \int_0^t \Phi_I dt \quad (\text{II-11})$$

$\Phi_I$  est proportionnel à la surface de la particule et à la densité d'ions, suivant la relation :

$$\Phi_I = \pi r^2 \bar{C} N_1 \exp(-n_p e^2 / r K T) \quad (\text{II-12})$$

d'où

$$n_p = \frac{r K T}{e^2} L_n \left( 1 + r^2 \bar{C} \frac{N_1 t e^2}{r K T} \right) \quad (\text{II-13})$$

Les calculs et les mesures effectués par PUI (81) montrent que pour  $r = 60 \text{ \AA}$  et pour un produit  $N_1 t = 10^6$  ions-seconde, 2.4 % seulement de particules sont chargées. Avec la même valeur de  $N_1 t$ , le pourcentage des particules chargées est égal à 75 % pour  $r = 600 \text{ \AA}$ .

#### 1.2.2.3. Caractéristiques du compteur électrique.

L'analyseur électrique d'aérosol utilisé est un modèle commercialisé par Thermo System. Dans cet appareil, le débit

Q de l'aérosol chargé est fixé à 4 l/min et le débit de charge est de 1 l/min. Le champ électrique est variable et peut prendre onze valeurs différentes, permettant ainsi l'établissement d'une granulométrie en dix classes. Le seuil nominal inférieur est  $3.2 \cdot 10^{-7}$  cm et le seuil supérieur  $10^{-4}$  cm, cet intervalle étant séparé en plusieurs canaux. On obtient la concentration  $n$  des particules dans chaque canal en multipliant la variation correspondante  $\Delta I$  de l'intensité du courant des charges arrivant sur le filtre  $F_e$  (Fig. II-2) par un facteur de proportionnalité qui varie entre  $10^{-6}$  pour le canal de diamètre moyen  $7.5 \cdot 10^{-7}$  cm et  $3.5 \cdot 10^3$  pour le canal  $7.5 \cdot 10^{-5}$  cm.

L'incertitude absolue sur  $\Delta n$  dépend donc de la classe considérée. Ainsi, une erreur de 0.001 mA sur le courant correspond, sur  $\Delta n$ , à une incertitude de  $10^{+4}$  pour la classe de diamètre moyen  $4.5 \cdot 10^{-7}$  cm et 3.5 pour la classe  $7.5 \cdot 10^{-5}$  cm.

### 1.2.3. Batteries de diffusion.

Une batterie de diffusion est un assemblage de plaques parallèles et équidistantes, ou de tubes cylindriques d'égal diamètre.

C'est, à notre avis, le meilleur moyen d'étude de la granulométrie d'un aérosol fin ( $r < 10^{-5}$  cm) puisqu'il permet théoriquement de descendre jusqu'aux dimensions moléculaires ou atomiques. De plus, ici, contrairement à ce qui se passe lors

de l'étude avec le compteur électrique ou le microscope électronique, on n'introduit pas de modification particulière sur les particules qu'on observe.

On fait passer à une vitesse  $v$  un aérosol à travers une batterie de diffusion. Soit  $n_0$  la concentration de l'aérosol à l'entrée de la batterie, et  $n$  sa concentration moyenne à la sortie. En traversant cette batterie, l'aérosol subit des pertes par diffusion brownienne. La forme analytique du rapport  $n/n_0$  dépend de la dispersion de l'aérosol.

#### 1.2.3.1. Aérosol monodispersé.

Dans le cas d'un aérosol monodispersé, si  $P_f$  est sa vitesse de formation par unité de volume et  $D$  son coefficient de diffusion, on a l'équation fondamentale :

$$D \Delta n - \operatorname{div} (n \underline{v}) + P_f = 0 \quad (\text{II-14})$$

où  $\underline{v}$  est le vecteur vitesse d'écoulement du fluide porteur de particules.

Si la concentration  $n_0$  à l'entrée de la batterie est constante et si, de plus, le fluide est supposé incompressible ( $\operatorname{div} \underline{v} = 0$ ), on a :

$$D \Delta n - \underline{v} \cdot \underline{\nabla} n = 0 \quad (\text{II-15})$$

On fait ensuite les hypothèses simplificatrices suivantes :

- le flux est laminaire dans la batterie
- la diffusion ne modifie que  $n$
- les particules entrant en contact avec les parois  $y$  restent piégées
- seule, la diffusion conduit les particules jusqu'aux parois.

On montre que, dans ces conditions, la solution de l'équation ci-dessus peut se mettre sous la forme (41, 100) :

$$\frac{n}{n_0} = \sum_i a_i \cdot \exp(-b_i \mu) \quad (\text{II-16})$$

où  $a_i$  et  $b_i$  sont des constantes sans dimension déterminées par plusieurs auteurs (41, 42, 50) et  $\mu$  un coefficient qui dépend de la taille des particules et des caractéristiques géométriques de la batterie de diffusion.

#### a) Batteries à plaques.

Dans le cas des batteries à plaques rectangulaires, si on pose :

$$\mu = N \frac{b l_i D}{a Q} \quad (\text{II-17})$$

avec :  $N =$  nombre de canaux de la batterie

$b$  = largeur des plaques

$l_1$  = longueur des plaques

$a$  = demi distance interplaque

$D$  = coefficient de diffusion des particules

$Q$  = débit de l'air à travers la batterie,

GORMLEY et KENNEDY (42) proposent la solution :

- Si  $\mu > 0.01$

$$\frac{n}{n_0} = a_1 \exp(-b_1 \mu) + a_2 \exp(-b_2 \mu) + \dots \quad (\text{II-18})$$

- Si  $\mu \leq 0.01$

$$\frac{n}{n_0} = 1 - 1.175 \mu^{2/3} + 0.1\mu + 0.0175 \mu^{3/4} + \dots \quad (\text{II-19})$$

Dans notre travail, nous utiliserons les équations de GORMLEY et KENNEDY avec les coefficients déterminés par TWOMEY (103) :

$$a_1 = 0.9103$$

$$a_2 = 0.0531$$

$$a_3 = 0.0153$$

$$b_1 = 1.8852$$

$$b_2 = 21.4315$$

$$b_3 = 62.3166$$

#### b) Batteries cylindriques.

Dans le cas des batteries cylindriques, on a :

$$\mu = \frac{l_1 D}{Q} \quad (\text{II-20})$$

et les équations de GORMLEY et KENNEDY sont encore valables, mais avec des constantes différentes :

pour  $\mu \leq 0.01$



$$\frac{n}{n_0} = 1 - 2.56 \mu^{2/3} + 1.2\mu + 0.177 \mu^{4/3} + \dots \quad (\text{II-21})$$

- Pour  $\mu > 0.01$

$$\frac{n}{n_0} = \sum_i a_i \exp(-b_i \mu) \quad (\text{II-22})$$

$a_i$  et  $b_i$  étant les coefficients de TWOMEY

$$\begin{array}{lll} a_1 = 0.8190 & a_2 = 0.0972 & a_3 = 0.0325 \\ b_1 = 3.6968 & b_2 = 22.305 & b_3 = 56.95 \end{array}$$

$n/n_0$  étant mesuré, on calcule le coefficient de diffusion  $D$  à partir des équations de GORMLEY et KENNEDY. On déduit, ensuite, le rayon  $r$  des particules de la relation de STOKES-CUNNINGHAM, corrigée par MILLIKAN (69) :

$$D = \frac{K T}{6\pi\eta r} \left[ 1 + A \frac{\lambda}{r} + B \frac{\lambda}{r} \exp\left(-C \frac{r}{\lambda}\right) \right] \quad (\text{II-23})$$

où

$T$  = température absolue ( $^{\circ}\text{K}$ )

$K$  = constante de BOLTZMANN =  $1.38 \cdot 10^{-16}$  dynes.cm/ $^{\circ}\text{K}$

$\eta$  = coefficient de viscosité dynamique de l'air

$\eta = 1.85 \cdot 10^{-4}$  CGS

$\lambda$  = libre parcours moyen des "molécules d'air"

$= 6.53 \cdot 10^{-6}$  cm

$A, B, C$  sont des constantes sans dimension

$A = 1.246$

$B = 0.42$

$C = 0.87$

### 1.2.3.2. Aérosol polydispersé.

Parmi les méthodes développées pour l'étude d'un aérosol polydispersé, et dont certaines, comme celles de FUCHS (36) et de METNIEKS (80), n'ont pratiquement plus qu'un intérêt historique, nous en avons retenu quatre que nous allons résumer rapidement.

#### a) Méthode de TWOMEY.

En régime laminaire, TWOMEY (105) établit une équation analogue à celle de FÜRTH (37) pour un aérosol au repos dans un cylindre de longueur infinie :

$$\frac{n}{n_0} = \frac{F'(x)}{n_0} = \frac{1}{n_0} \int_0^{\infty} f'(D) \rho(D, Q) dD \quad (\text{II-24})$$

Soit, en posant :

$$f(D) = \frac{1}{n_0} f'(D)$$

$$F(x) = \frac{1}{n_0} F'(x)$$

$$\frac{n}{n_0} = F(x) = \int_0^{\infty} f(D) \rho(D, Q) dD \quad (\text{II-25})$$

où  $f(D)$  est la fonction de distribution telle que l'aérosol de départ contienne  $f'(D) dD$  particules de coefficient de diffusion compris entre  $D$  et  $D + dD$

$\rho(D, Q)$  est la proportion de particules qui, au débit  $Q$ , ne sont pas piégées par la batterie, soit :

$$\rho(D, Q) = \sum_1 a_i \exp(-b_i x D) \quad (\text{II-26})$$

avec  $x = \mu/D$

$a_i$ ,  $b_i$  et  $\mu$  ont les mêmes significations qu'au paragraphe 1.2.3.1, dans le cas des batteries cylindriques.

Le problème revient à déterminer  $f(D)$  à partir de l'équation II-25, qui est une équation intégrale de FREDHOLM(105). Or, cette équation ne peut avoir de solution exacte que si le premier membre a une forme analytique, c'est-à-dire si  $n/n_0$  est déterminé avec une rigoureuse précision, ce qui n'est expérimentalement pas possible avec les appareils dont on dispose actuellement. Ceci constitue la difficulté essentielle dans la détermination des granulométries d'aérosols au moyen des batteries de diffusion.

Pour résoudre l'équation II-25, TWOMEY (103) utilise soit comme Phillips (77) les multiplicateurs de LAGRANGE, soit les transformées de LAPLACE.

#### 1° Méthode des multiplicateurs de LAGRANGE

(a, b) étant le domaine d'intégration et  $e(Q)$  une fonction erreur, on pose :

$$F(x) + e(Q) = \int_a^b f(D) \rho(D, Q) dD \quad (\text{II-27})$$

En découpant le domaine  $(a, b)$  en  $N$  intervalles, on peut obtenir  $N$  coefficients  $x_{ij}$  tels que :

$$\int_a^b f(D) \rho(D, Q) dD = \sum_i x_{ij} (Q) f_i = \sum_i F_i$$

Si  $X$  est la matrice des coefficients  $x_{ij}$  et  $\underline{f}$ ,  $\underline{e}$ ,  $\underline{F}$  les vecteurs de composantes  $f_i$ ,  $e_i$  et  $F_i$ , l'équation ci-dessus peut encore s'écrire :

$$\underline{F} + \underline{e} = X \underline{f} \quad (\text{II-28})$$

D'où

$$\underline{f} = X^{-1} \underline{F} + X^{-1} \underline{e}$$

La solution ainsi trouvée est malheureusement oscillante. Pour supprimer ces oscillations, on cherche des coefficients tels que si  $A$  est une matrice liée à  $X^{-1}$ , le vecteur

$$\underline{f} = (X + \gamma A)^{-1} \underline{F}$$

rend minimum  $\sum_j e_j$

La recherche des coefficients  $\gamma$  n'est pas aisée. A chaque matrice  $X$  correspond une valeur particulière de  $\gamma$  qui ne supprime pas nécessairement les oscillations.

## 2°) Méthode des transformées de LAPLACE.

En notant que la transformée de LAPLACE d'une fonction  $f(D)$  est :

$$L_x (f) = \int_0^{\infty} \exp (-x D) \cdot f (D) dD,$$

et tenant compte de l'équation II-26, l'équation II-25 peut se mettre sous la forme :

$$F (x) = \sum_i a_i L_{b_i x} (f (D)) \quad (\text{II-29})$$

Quand  $F(x)$ , c'est-à-dire pratiquement  $n/n_0$ , est connu ou mesuré avec suffisamment de précision,  $f(D)$  s'obtient alors par la transformée inverse  $L^{-1}(F(x))$ .

La solution ainsi trouvée est encore oscillante, car une faible erreur  $e(Q)$  sur  $F$  donne une erreur importante  $e^{-1}(Q)$  sur  $f$ . Cette solution montre généralement une pluri-modalité.

Pour tester la validité physique d'une bimodalité, on regarde l'effet de sa suppression sur  $F(x)$ . On cherche pour cela une fonction sinusoïdale  $f_1$  d'amplitude  $A_1'$  et de période  $T_1$  (Fig. II-3) dont on détermine la transformée  $F_1'(x)$  sur un seul cycle :

$$F_1'(x) = \int_{t_1}^{t_1+T_1} \exp (-Dt) f_1 dt = A_1' \int_{t_1}^{t_1+T_1} \exp (-Dt) \sin \frac{2\pi}{T_1} dt \quad (\text{II-30})$$

l'écart

$$\delta(D) = |F(x) - F_1'(x)|$$

mesure la validité de la bimodalité.

Si  $\delta(D)$  » erreur sur  $F(x)$ , alors la bimodalité a probablement une existence physique.

Cette méthode trop rigoureuse par rapport aux erreurs expérimentales ne peut être, de ce fait, appliquée pratiquement.

b) Méthode de BUSINGER-GOLUB.

BUSINGER et GOLUB (14) proposent de résoudre l'équation générale de la forme :

$$\underline{F} = X \underline{f} \quad (\text{II-31})$$

en minimisant la norme  $|\underline{f}|$  de  $\underline{f}$  telle que :

$$|X \underline{f} - \underline{F}| < e_c$$

où  $e_c$  est la précision de l'ordinateur utilisé pour les calculs.

Cette méthode, dite de décomposition en valeurs singulières, consiste à décomposer la matrice  $X$  en valeurs propres, puis à éliminer les valeurs propres les plus fai-

bles qui conduisent à des oscillations de sorte de ne retenir que les  $k$  premières et les  $k$  vecteurs propres associés. On peut montrer (40) que ces derniers sont solution de l'équation :

$$\underline{F} = X_k \underline{f}$$

dans laquelle la matrice réduite  $X_k$  est, de toutes les matrices de rang  $k$ , la meilleure approximation, au sens de FROBENIUS, de la matrice initiale  $X$ .

En d'autres termes, on doit avoir :

$$\|X\|_F \approx \|X_k\|_F \Rightarrow \left( \sum_i \sum_j x_{ij}^2 \right)^{\frac{1}{2}} = \left( \sum_k \sum_l x'_{kl}{}^2 \right)^{\frac{1}{2}}$$

où  $x_{ij}$  et  $x'_{kl}$  sont les éléments des matrices  $X$  et  $X_k$ .

Mais, en dehors du fait qu'on travaille maintenant sur la matrice réduite  $X_k$  au lieu de la matrice expérimentale  $X$ , ce qui introduit des erreurs supplémentaires, on peut faire deux observations :

- La détermination de  $k$  pose des problèmes analogues à ceux rencontrés lors de la recherche de  $\gamma$  dans la méthode de TWOMEY.
- On cherche à rendre l'écart

$$|X \underline{f} - \underline{F}|$$

inférieur à la précision de l'ordinateur alors que les erreurs expérimentales sont plus importantes.

L'utilisation de cette méthode par COOPER et SPIELMAN (22) n'a pas toujours donné des résultats très satisfaisants.

c) Méthode d'IKEBE (9, 48).

Le domaine d'intégration de l'équation II-25 étant divisé en N intervalles, IKEBE (48) pose :

$$\frac{n_i}{n_o} = \sum_{j=1}^N f(D_j) \rho(Q_i, D_j) \Delta D_j$$

A partir de valeurs initiales arbitraires de  $f(D_j)$  il procède par itération de la façon suivante :  $f^{(P)}$  et  $f^{(P+1)}$  étant respectivement la  $P^{\text{ième}}$  et la  $(P+1)^{\text{ième}}$  approximation de  $f$ , il pose :

$$\left(\frac{n_i}{n_o}\right)^{(P)} = \sum_{j=1}^N f^{(P)}(D_j) \rho(Q_i, D_j) \Delta D_j$$

et en déduit :

$$f^{(P+1)}(D_j) = \frac{\left(\frac{n_i}{n_o}\right)^{\text{exp}}}{\left(\frac{n_i}{n_o}\right)^{(P)}} f^{(P)}(D_j) \quad (\text{II-32})$$

où  $\left(\frac{n_i}{n_o}\right)^{\text{exp}}$  est la valeur expérimentale de  $n_i/n_o$ .



d) Méthode de MAIGNE (64).

La distribution des coefficients de diffusion des particules de l'aérosol étudié est recherchée sous forme d'histogramme classique comportant N classes.

Dans chacune des N classes, la distribution des coefficients de diffusion  $f(D)$  est supposée constante. Cette hypothèse et la théorie des batteries de diffusion permettent d'écrire un système linéaire de N équations à N inconnues qui sont les pourcentages de particules contenues dans chacune des classes, si l'on dispose de N mesures du rapport  $\frac{\bar{n}}{n_0}$  des concentrations moyennes en aval et en amont de la batterie pour N débits différents à travers celle-ci.

Il est impossible d'obtenir une solution exacte, physiquement satisfaisante, du système d'équations précédent, en raison de la précision insuffisante avec laquelle les valeurs expérimentales des rapports  $\frac{\bar{n}}{n_0}$  sont obtenues aux différents débits.

Une solution approchée du système linéaire est recherchée par l'introduction de contraintes sur la distribution des coefficients de diffusion  $f(D)$ . Pour ce faire, MAIGNE regroupe les N classes initiales en M segments ( $M < N$ ) comprenant chacun plusieurs classes successives, et considère que, sur chaque segment, la distribution des coefficients de diffusion des particules d'aérosol obéit à une loi log-normale. La distribution des coefficients de diffusion des particules est donc cherchée sous la forme de M éléments

successifs et jointifs de distributions log-normales différentes.

En se fixant le plus petit coefficient de diffusion des particules d'aérosol, et compte tenu des conditions de continuité qu'il est nécessaire de respecter aux jonctions des différents éléments de distribution log-normale, le système d'équations précédent est ramené à un système de  $N$  équations à  $M$  inconnues indépendantes, constituées par les diamètres géométriques moyens des  $M$  distributions log-normales qui approchent sur chacun des  $M$  segments considérés plus haut la distribution réelle de l'aérosol.

L'algorithme permettant de trouver une solution satisfaisante aux équations est basé sur :

- la prise en compte de  $M$  équations seulement, convenablement choisies parmi les  $N$  équations proposées.
- La détermination par approximations successives du plus petit coefficient de diffusion des particules d'aérosol.
- La prise en compte de l'incertitude sur les valeurs expérimentales des rapports  $\frac{\bar{n}}{n_0}$  aux différents débits.

Cet algorithme est décrit complètement dans MAIGNE (65).

### 1.2.3.3. Montage des batteries de diffusion.

Notre montage semi-automatique (Fig. II-4) comprend :

- Deux batteries de diffusion à plaques rectangulaires  $B_1$  et  $B_2$ , deux pompes, un minuteur, trois rotamètres et douze électrovannes. Les deux batteries ont respectivement 48 et 200 canaux, leurs plaques ont 10 cm de large et 35 cm de long, les demi-distances interplaques étant 0,24 cm et 0,03 cm.
- Une batterie cylindrique constituée de 10 tubes de 1 m de longueur et de 1 cm de diamètre.
- Un compteur de noyaux de condensation (CNC) de la General Electric.
- Une sphère de 800 litres.

Les rotamètres, déjà mis en place sur le montage, sont préalablement étalonnés avec un compteur volumétrique branché à l'entrée des batteries.

Les batteries  $B_1$  et  $B_2$  sont montées en parallèles, ce qui permet de travailler simultanément à deux débits différents, d'où l'obtention de deux points expérimentaux en même temps. D'autre part,  $B_2$  (200 canaux) donne de faibles atténuations correspondant à la non captation des grosses

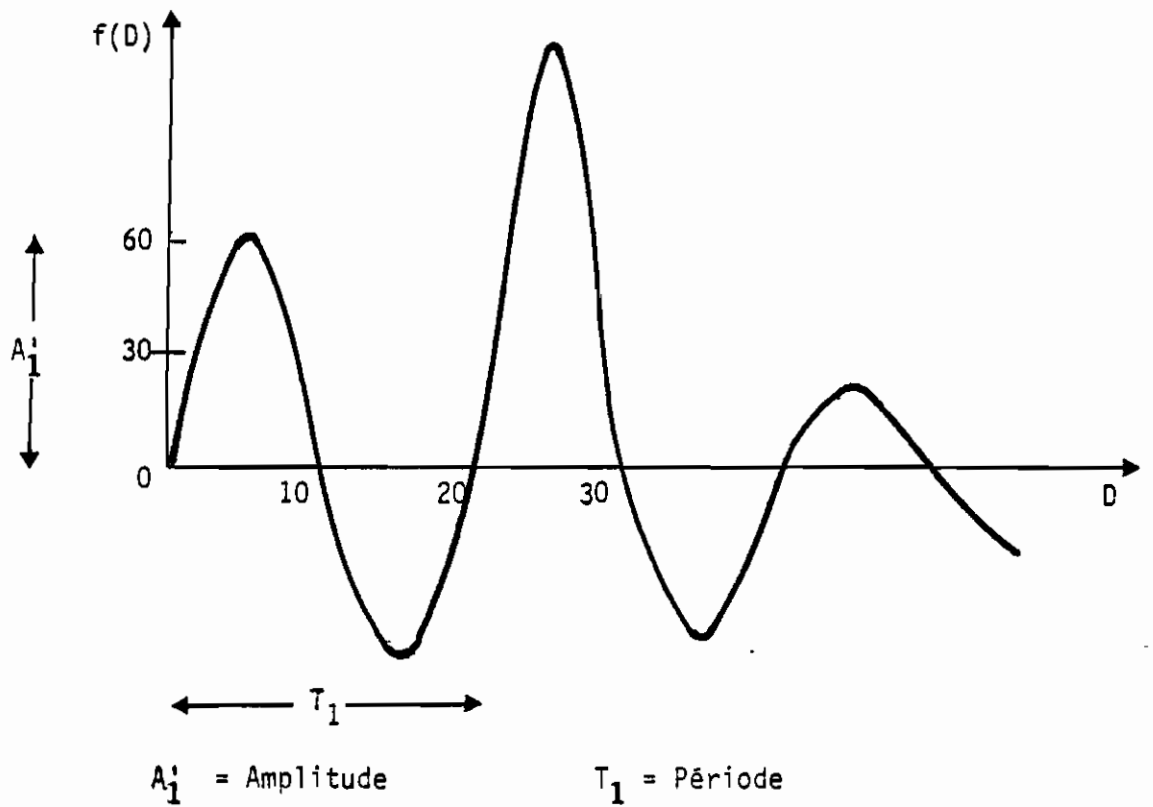


Fig. II-3 : TEST DE VALIDITE D'UNE BIMODALITE

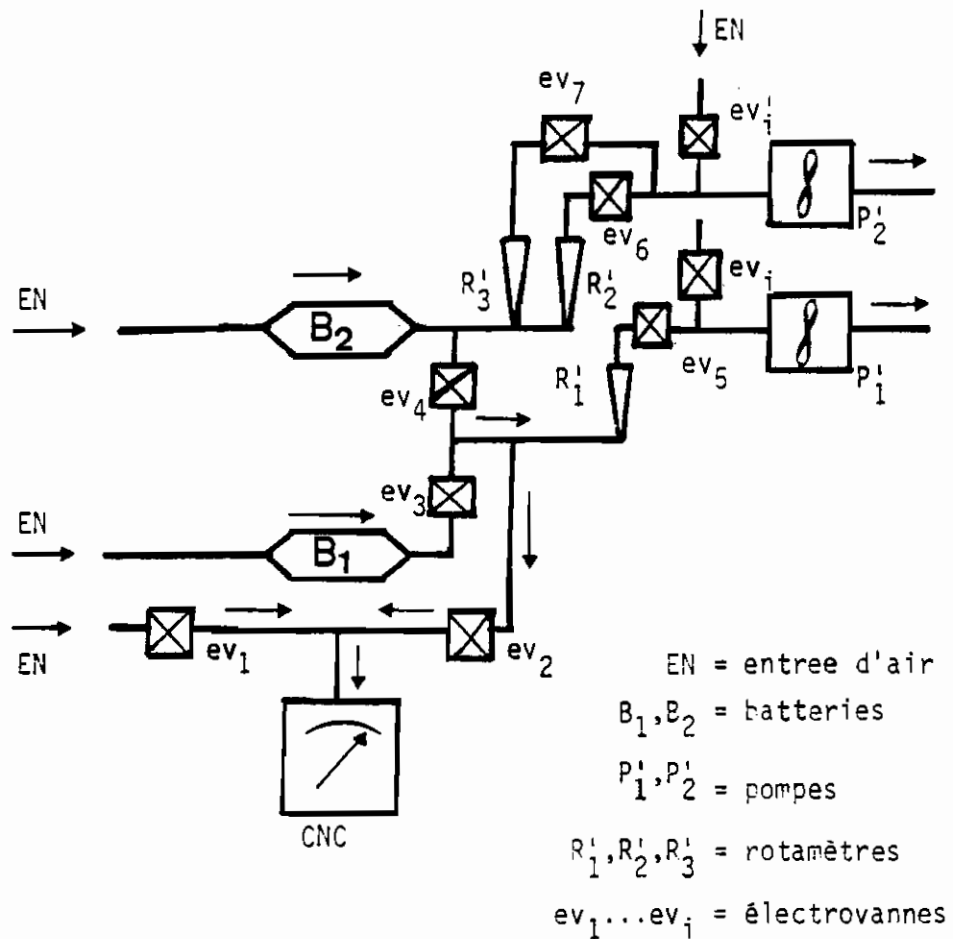


Fig. II-4 : MONTAGE EXPERIMENTAL

particules (de l'ordre de  $10^{-5}$  cm). Par contre  $B_1$ , qui ne compte que 48 canaux, permet d'accéder aux particules ultrafines ( $2 \cdot 10^{-7}$  cm) pour des débits de quelques litres à la minute, ce qui correspond à un régime laminaire. Ainsi, un débit de 6 l/min établi dans  $B_1$  conduit à la même atténuation  $n/n_0$  qu'un débit de 200 l/min dans  $B_2$ .

Pour les batteries à plaques, les débits expérimentaux étant compris entre 1 l/min et 42 l/min, le nombre de Reynolds,

$$R_e = \frac{\bar{v} l}{\eta} \quad (\text{II-33})$$

où

$\bar{v}$  = vitesse moyenne de l'air à l'entrée d'un canal

$l$  = longueur d'un canal

$\eta$  = viscosité dynamique de l'air

est compris entre 9.1 et 382.5. Or l'écoulement est laminaire si  $R_e$  est inférieur ou égal à 1000 (20), ce qui est donc bien réalisé dans nos expériences.

De même, avec la batterie à tubes cylindriques, on a :

$$R_e = \frac{2 R \bar{v}}{\eta}$$

ce qui peut encore s'écrire :

$$R_e = \frac{2 Q}{\pi \eta R}$$

où  $Q$  est le débit d'aérosol à travers le tube de rayon  $R$ .

Avec la batterie utilisée et pour les mêmes débits que ci-dessus, on a :

$$29 \leq R_e \leq 1276$$

L'écoulement est donc laminaire puisqu'il suffit, dans ce cas, que le nombre de Reynolds soit inférieur ou au plus égal à 2000 (20).

Le rotamètre  $R_1$  permet de contrôler le débit  $Q_1$  établi dans la batterie  $B_1$  par la pompe  $P_1$ . De même, les rotamètres  $R_2$  et  $R_3$  permettent le contrôle du débit  $Q_2$  établi dans la batterie  $B_2$  par la pompe  $P_2$ .  $R_2$  est utilisé pour des débits inférieurs ou égaux à 7 l/min.  $ev_1, ev_2, \dots, ev_i$  sont des électrovannes. A l'exception de  $ev_1$  et  $ev_2$ , leur ouverture est commandée par les contacteurs électriques d'un combinatoire cyclique à neuf cames qui se charge également de la mise en route et de l'arrêt des pompes. La rotation de ce combinatoire est assurée par un micromoteur;  $ev_1$  et  $ev_2$ , qui servent à la commutation du compteur de noyaux de l'amont à l'aval des batteries, sont commandées par un minuteur. Grâce à  $ev_3$  et  $ev_4$ , la concentration de l'aérosol à la sortie des batteries est mesurée, tantôt en aval de  $B_1$ , et tantôt en aval de  $B_2$ , par un compteur de noyaux de condensation (CNC) de la General Electric. Ce compteur produit une sursaturation de 400 % en refroidissant par détente adiabatique l'aérosol préalablement saturé de vapeur d'eau. Le comptage se ramène ensuite à une mesure de flux lumineux diffusé par les

particules.

La saturation de 400 % correspond à une dépression de 20 cm de mercure. Au cours de nos études, le CNC était réglé pour une détente de 25 cm de mercure ; on se situait ainsi, pour un meilleur rendement de comptage, juste au-dessous de la dépression pour laquelle apparaît, comme nous le verrons au chapitre suivant, la nucléation homogène. Le cycle de mesure du CNC dure 0.2 secondes.

Les réglages de débit sont effectués automatiquement par les électrovannes  $eV_1$  et  $eV_1'$ . Le temps nécessaire pour effectuer une série complète de mesures est de 8 minutes.

La concentration en amont des deux batteries  $B_1$  et  $B_2$  est la même et égale à la concentration  $n_0$  de l'aérosol ambiant. Or  $n_0$  peut varier au cours du temps, parfois dans de larges proportions. On ne prendra donc en considération que des ensembles de points expérimentaux pour lesquels  $n_0$  est pratiquement constant. L'électrovanne  $eV_2$  étant fermée et  $eV_1$  ouverte, on mesure  $n_0$  pendant tout le temps où les débits  $Q_1$  et  $Q_2$  sont établis dans les batteries  $B_1$  et  $B_2$  ; on ferme ensuite  $eV_1$ ,  $eV_5$  et  $eV_6$ , puis on ouvre  $eV_2$  et on mesure la concentration moyenne  $n$  en aval des batteries.

La concentration et la distribution en taille de l'aérosol atmosphérique dépendent de plusieurs paramètres ; nous en avons déterminés quelques-uns en même temps que nos mesures de granulométrie.

### 1-3. Paramètres annexes.

Ces paramètres sont :

- La température,
- l'humidité relative,
- la vitesse et la direction du vent.

#### a) Température et humidité relative.

L'équation II-23 montre que le coefficient de diffusion d'une particule de rayon  $r$  dépend de la température du gaz dans lequel elle est en suspension. Il est donc nécessaire de connaître cette température au cours des différentes expériences. A cette fin, nous avons construit un système de trois sondes à thermistance dont les tensions de sortie varient avec la température. L'une de ces sondes donne la température sèche dans l'atmosphère libre ; avec la seconde, on mesure la température du thermomètre mouillé et on en déduit l'humidité relative de l'air ambiant. On sait, en effet, que la taille des particules peut dépendre de cette humidité. La troisième sonde permet de déterminer la température dans la sphère de 800 litres utilisée pour l'étude d'un gaz de combustion (chapitre VI).



b) Vent : Vitesse et direction.

Un anémo-girouette nous permet de déterminer simultanément la vitesse et la direction du vent au cours de chaque mesure.

2. SITES DE MESURE.

Au cours de ce travail, nous avons voulu connaître la granulométrie de l'aérosol atmosphérique en milieu rural, en zone urbaine, et en mer, c'est-à-dire en zones polluées et non polluées. Le choix des sites de mesure a été également guidé par des considérations d'ordre pratique, en particulier :

- l'existence d'une source d'énergie pour l'alimentation des appareils électriques,
- la facilité d'accès et
- la possibilité de protection dans un abri pour des études de longue durée.

Les différentes mesures ont ainsi été effectuées à la Faculté des Sciences de Paris (Jussieu), à Brest, à Guisseny et au Centre de Mesures Atmosphériques de Guyancourt (Fig.II-5).

### 2.1. Paris-Jussieu.

Ce site a été choisi d'une part parce que nous y travaillions déjà, et d'autre part du fait que, situé au coeur de Paris, il peut donner une bonne idée de l'aérosol urbain.

L'Université Pierre et Marie Curie, entourée de rues, est située dans une zone à circulation automobile particulièrement dense. Dans l'enceinte même de l'Université la circulation des voitures est importante, surtout à l'ouverture et à la fermeture des bureaux. L'aérosol étudié est prélevé sur la terrasse d'où un tuyau de 30 mm de diamètre et de 3 m de long le conduit jusqu'aux appareils de mesure situés dans une pièce du Laboratoire de Physique des Aérosols, au 5ème étage et à une vingtaine de mètres du sol.

### 2.2. Brest.

A Brest, les mesures sont faites au bord de la mer avec un vent d'Ouest dominant. Les appareils sont placés directement à l'extérieur, à 1.5 m du sol.

Il n'y a pas de proximité immédiate de route et la seule source de pollution locale importante, mais très intermittente, est constituée par les bateaux qui passent de temps en temps à quelques centaines de mètres de nos installations. Par contre, on a en permanence la petite pollution à distance des navires qui croisent au large.

La seule méthode utilisée ici pour la détermination de la granulométrie est le comptage électrique.

### 2.3. Guisseny.

Les mesures sont effectuées sur la côte Atlantique, à 4 km de cette petite agglomération du Nord Finistère (48°38' N, 4°27' W). Les appareils sont installés à une vingtaine de mètres de la mer et l'aérosol est prélevé à environ 1 m du sol. Suivant la direction du vent, l'aérosol qui arrive au point de mesure peut être marin pur (vent d'Ouest à Nord-Nord Est), côtier (vent de WSW à ENE), ou purement continental (vent de SW, E ou SE).

L'intérêt de ce site vient également de l'existence d'un important champ d'algues (Fig. II-6) dont la largeur est maximale dans la direction Ouest-Nord-Ouest du point de mesure. Ce champ d'algues se découvre à marée basse et peut donner lieu, quand les conditions sont favorables, à la génération d'importantes concentrations de noyaux (73).

La situation de ce site est donc exceptionnelle puisque, avec les changements de la direction du vent, on peut aller d'une masse d'air continentale polluée, à l'air marin pratiquement non pollué, en passant par une atmosphère marine où la création naturelle de particules est très importante.

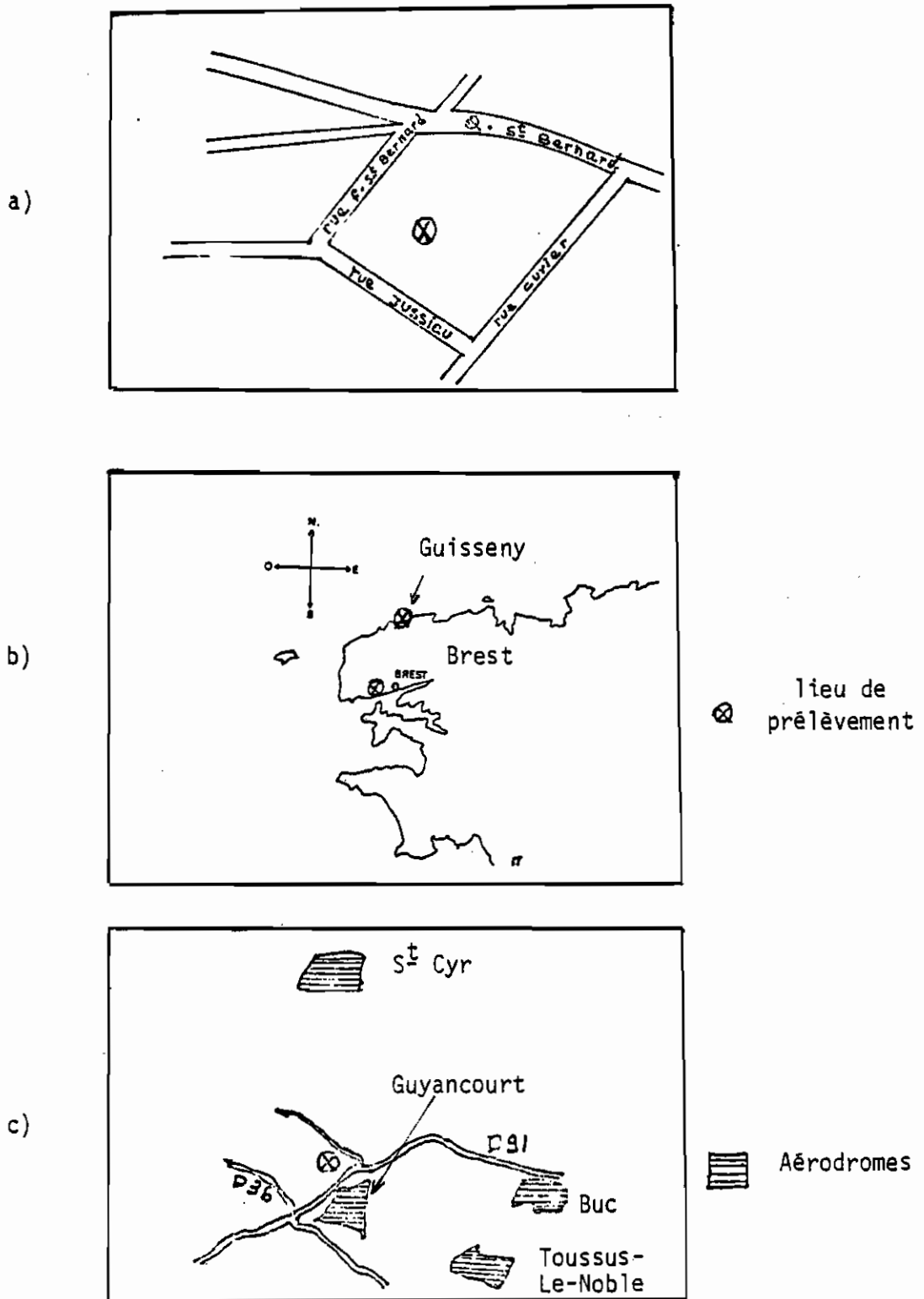


Fig. II-5: SITES DE PRELEVEMENT: a) Paris-Jussieu  
 b) Brest et Guisseny  
 c) Guyancourt

#### 2.4. Guyancourt.

Ce site a été choisi pour sa situation en zone rurale. Ici, nos installations de mesure sont placées au Centre de Mesures Atmosphériques, aux abords des champs et des buissons et à quelques centaines de mètres de l'aérodrome et de la route départementale 91. Il existe plusieurs autres aérodromes dans la région, en particulier ceux de Buc et de Toussus-le-Noble. Les appareils sont également placés à l'extérieur et l'aérosol atmosphérique leur arrive directement.

Après avoir donné quelques résultats préliminaires obtenus en ces différents endroits, nous choisirons les meilleurs moyens d'étude de la granulométrie. Nous indiquerons également quelques améliorations apportées à la méthode de MAIGNE et une nouvelle méthode d'intégration mise au point avec ARNAUD.

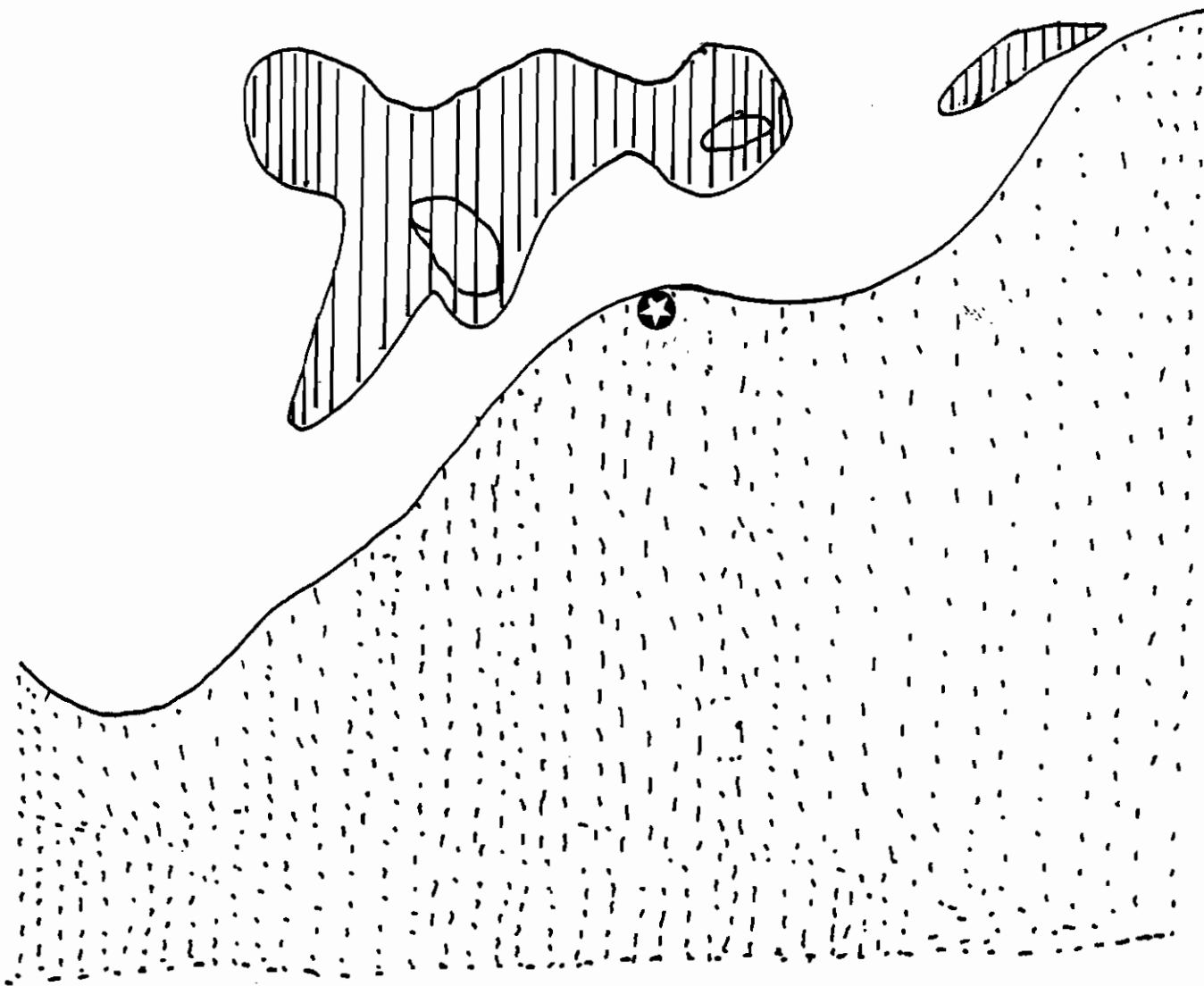
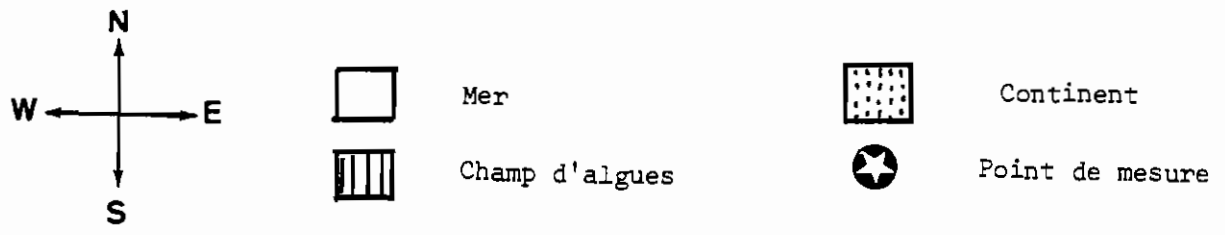


Fig. II-6: SITE DE GUISSENY

## CHAPITRE III

### RESULTATS PRELIMINAIRES ET CHOIX DES MOYENS D'ETUDE

Dans ce chapitre, nous donnerons d'abord quelques résultats des tests effectués sur les appareils de mesure. Nous indiquerons ensuite des résultats préliminaires dont la discussion nous conduira au choix des meilleurs moyens d'étude granulométrique d'aérosol.

#### 1. ETALONNAGES.

##### 1.1. Sondes de température et rotamètres.

###### 1.1.1. Température.

Les résistances associées aux sondes de température sont telles que leur tension de sortie varie entre 140 mv et 400 mv lorsque la température  $T$  passe de  $T_0 = 0^\circ$  à  $T_f = 40^\circ\text{C}$ . La figure III-1 montre que la variation de la réponse des sondes est linéaire dans l'intervalle  $(T_0, T_f)$ . Le décalage entre les courbes  $T_1$ ,  $T_s$  et  $T'_w$  est dû aux petits écarts entre les valeurs des résistances de sortie des sondes.

### 1.1.2. Rotamètres.

Pour étalonner les différents rotamètres du montage de la figure II-4, nous avons utilisé un compteur à gaz. Ce compteur, branché à l'entrée des batteries B<sub>1</sub> ou B<sub>2</sub>, donne le volume d'air aspiré à travers l'une ou l'autre de ces batteries pendant un intervalle de temps donné. On en déduit les débits Q d'aérosol à travers B<sub>1</sub> et B<sub>2</sub>. Les courbes de la figure III-2 montrent les variations de débit en fonction des indications des rotamètres. La non linéarité observée sur la figure III-2-b pour Q supérieur à 10 l/mn est due principalement aux pertes de charge sur le circuit de B<sub>2</sub>. Par la suite, ces courbes permettent de déterminer les débits avec plus de précision que si l'on se contentait des valeurs lues directement sur les rotamètres.

### 1.2. Compteur de noyaux.

Nous avons dit au chapitre II ci-dessus (paragraphe 1.2.3.3.) que le compteur de noyaux de condensation (CNC) produisait une sursaturation S de 400 % par détente adiabatique. Si P<sub>v</sub> est la pression de vapeur en phase gazeuse et P<sub>v∞</sub> la pression de vapeur saturante de l'eau à la température T (°K), on a :

$$S = \frac{P_v}{P_{v\infty}} \quad (\text{III-1})$$



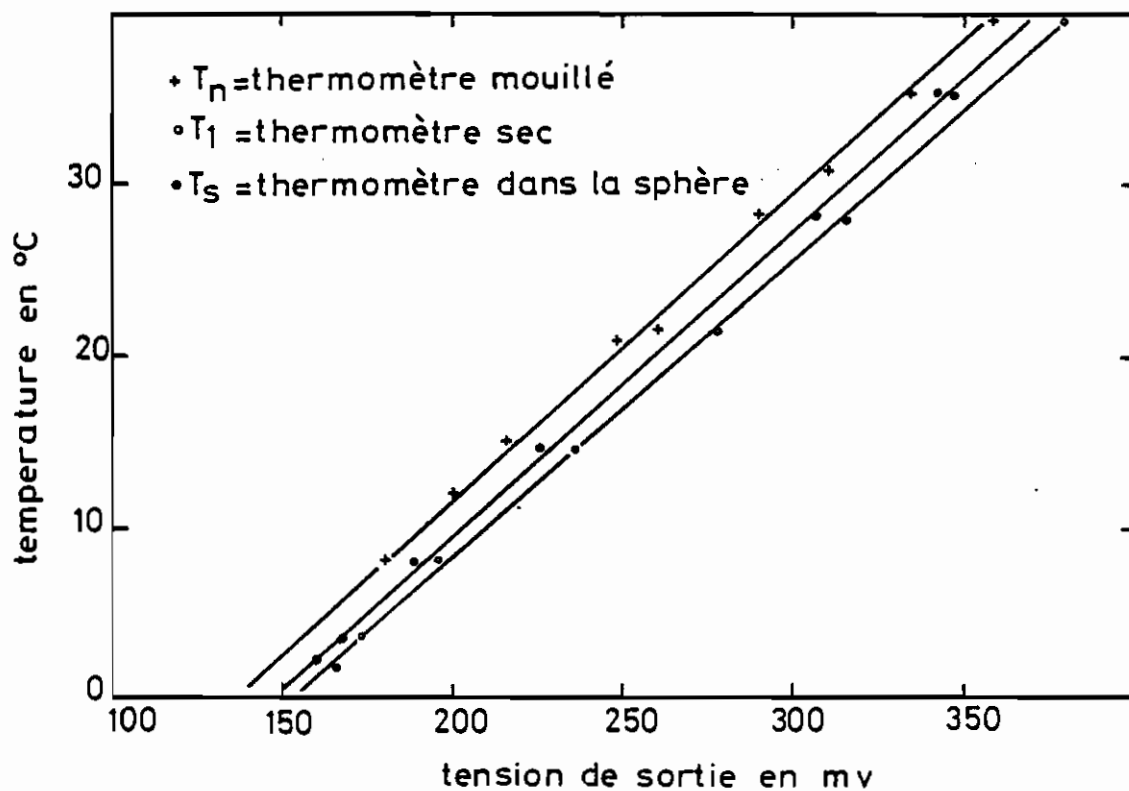
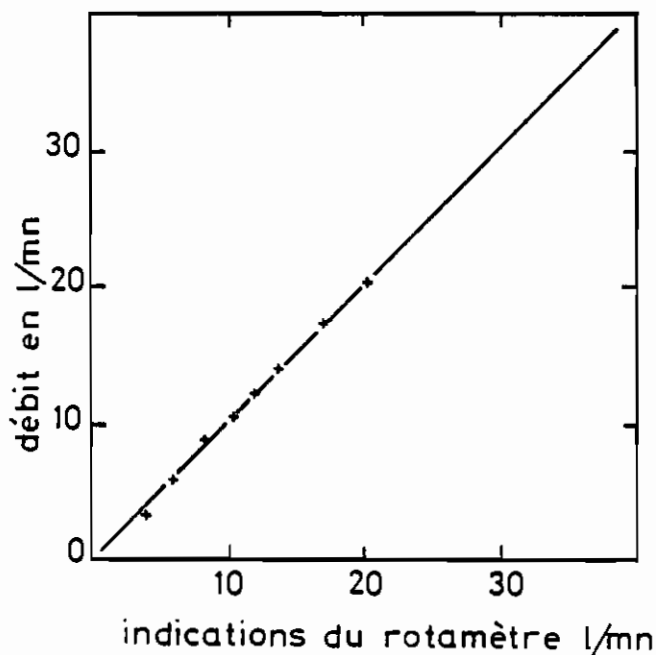
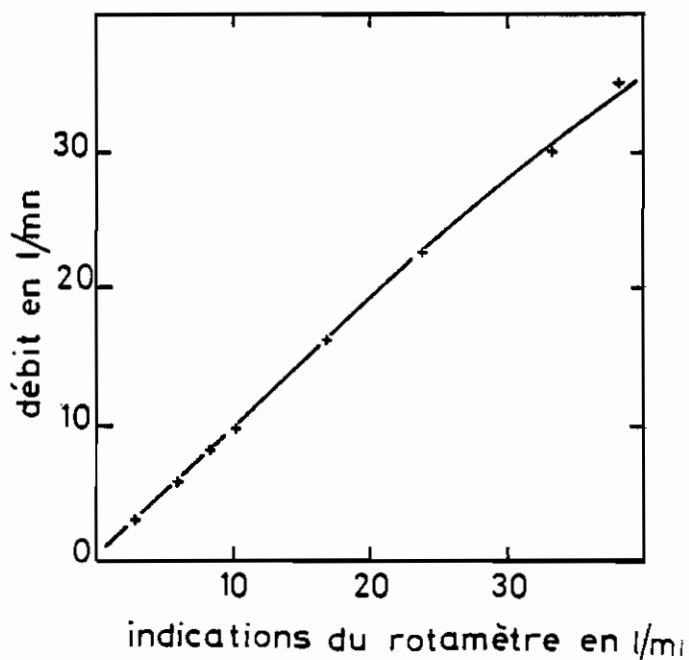


Fig III-1: TENSION de SORTIE des THERMISTANCES en FONCTION de la TEMPERATURE



a)  $B_1$



b)  $B_2$

Fig III-2: INDICATIONS des ROTAMETRES en FONCTION du DEBIT

L'équation de Kelvin :

$$\ln S = \frac{2\sigma M}{RT\rho r} \quad (\text{III-2})$$

où  $\rho$  est la densité du liquide de masse molaire  $M$ ,  $\sigma$  est la tension superficielle et  $R$  la constante des gaz parfaits,

permet de déterminer la sursaturation critique  $S_r$  pour laquelle un noyau de rayon  $r$  reste stable, c'est-à-dire ne s'enrichit ni ne s'appauvrit en vapeur d'eau.

A 20°C on a :

$$S_r = \exp(2\sigma M/RT\rho r)$$

$$S_r = \exp(1,07 \cdot 10^{-7}/r)$$

Les résultats des calculs numériques pour  $r$  compris entre  $5 \cdot 10^{-8}$  cm et  $10^{-4}$  cm sont portés sur la Figure III-3. On voit sur cette figure que l'enrichissement en vapeur d'eau des particules de  $7 \cdot 10^{-8}$  cm de rayon, et par conséquent la détection, n'est envisageable que si  $S > 400 \%$  ; par contre au-delà de  $10^{-6}$  cm, une valeur  $S = 100 \%$  suffit.

Le grossissement d'un noyau de rayon  $r$  n'est possible que si la sursaturation  $S$  est supérieure à la valeur critique  $S_r$  ; le noyau se nourrit alors de la vapeur d'eau qui vient se condenser sur sa surface, d'où une baisse de la sursaturation et l'arrêt du grossissement quand on atteint

la limite  $S \leq S_r$ .

Sur la figure III-4 sont portées les variations de la réponse du CNC GE en fonction de la détente (ou de la sursaturation puisque  $S = \frac{P}{P_{v_{\infty}}}$ ) : la courbe 1 est celle de la nucléation homogène obtenue en aspirant à travers un filtre absolu ; la courbe 2 correspond à un aérosol atmosphérique à Paris (Jussieu-Faculté des Sciences) la courbe 3 enfin est celle d'un aérosol de radiolyse produit par action du rayonnement  $\alpha$  d'une source de polonium sur l'anhydride sulfureux. La courbe 2 présente un palier pour une détente comprise entre 21 et 29 cm de mercure ; le palier est plus réduit (24 à 28 cm) pour la courbe 3 qui correspond à un aérosol plus fin. La zone de fonctionnement maximal du CNC est donc d'autant plus réduite que la taille des noyaux à détecter est faible. Nous reviendrons ci-dessous sur cette question quand nous traiterons les problèmes de défaut de comptage. Pour travailler dans des conditions optimales, sans pour autant être gêné par la nucléation homogène qui démarre dès que la détente dépasse 26 cm de mercure, nous avons fixé le point de fonctionnement du CNC à 25 cm de mercure.

La figure III-5 représente pour des particules de  $7.10^{-6}$  cm de diamètre, les variations de la réponse du CNC ( $n_{cnc}$ ) en fonction de la concentration "absolue"  $n_{abs}$  ; celle-ci est obtenue grâce à un générateur d'aérosols de LIU (59) que nous décrivons ci-dessous au paragraphe V-2. Sur cette figure, on remarque que la variation de  $n_{cnc}$

Fig III-3.VARIATION de  
la SURSATURATION  
en FONCTION du  
RAYON des NOYAUX  $S_T$

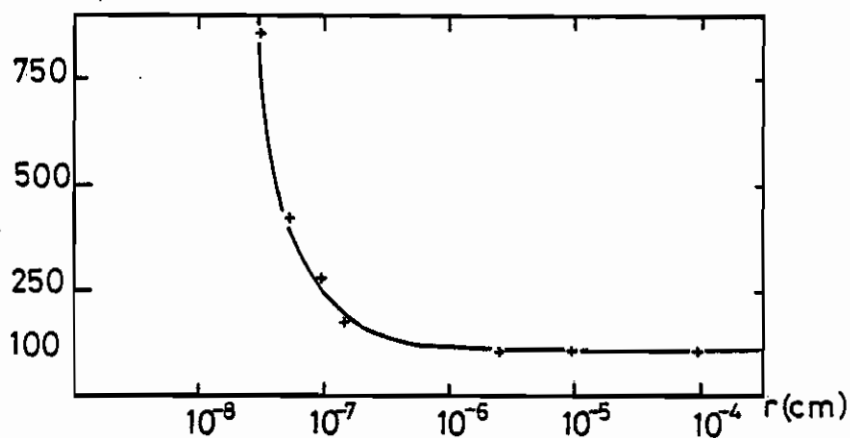


Fig III-4:CONCENTRATION  
en FONCTION de  
la DETENTE

- 1 + nucléation homogène
- 2 • atmosphère
- 3 • radiolyse
- PF=point de fonctionnement

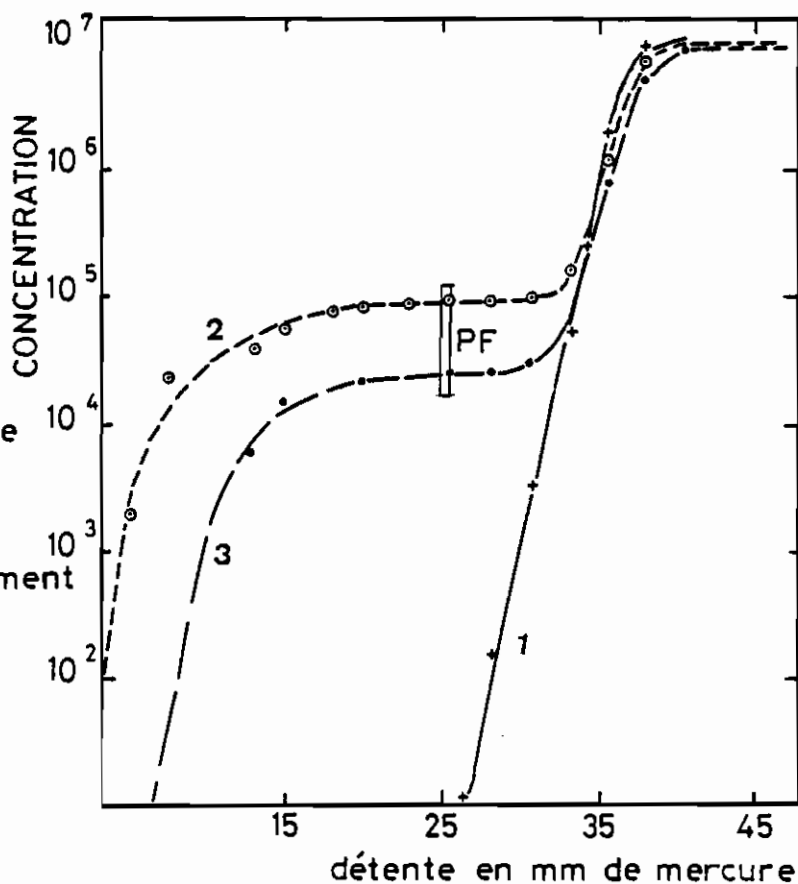
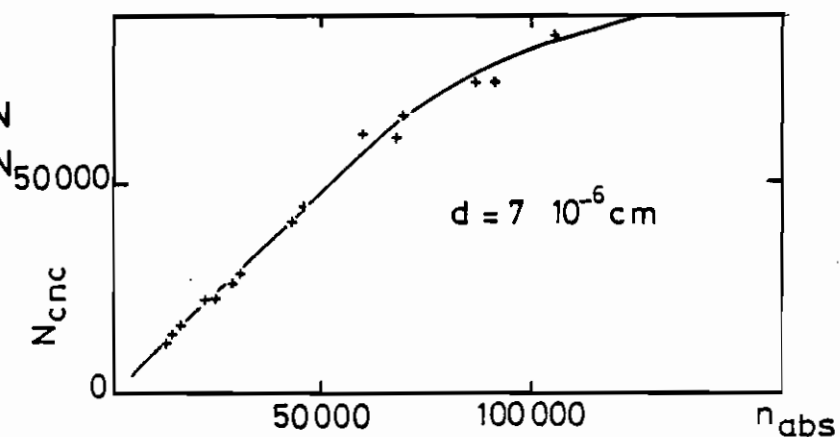


Fig III-5:REPONSE du  
CNC en FONCTION  
de la CONCENTRATION



en fonction de  $n_{\text{abs}}$  est pratiquement linéaire jusqu'à 70 000 particules par  $\text{cm}^3$ . En dessous de cette limite, les valeurs lues au CNC correspondent donc aux concentrations réelles, du moins pour les particules de diamètre supérieur ou égal à  $7 \cdot 10^{-6}$  cm (diamètre des particules utilisées pour l'étalonnage).

### 1.3. Compteur électrique.

En nous servant également du générateur de LIU (59) nous avons produit des aérosols "monodispersés" qui nous ont permis de tester la réponse du compteur électrique de WHITBY. Pour différentes valeurs du diamètre nominal de l'aérosol pulvérisé, nous avons établi la granulométrie de cet aérosol à l'aide de l'analyseur électrique. Les résultats correspondants sont représentés en échelle logarithmique sur les courbes de la figure III-6, où nous avons porté les variations de  $\Delta n / \Delta \log d$  en fonction du diamètre  $d$ . Ces courbes montrent que, tant que le diamètre nominal  $d_n$  de l'aérosol produit est supérieur ou égal à 0,04  $\mu\text{m}$ , la granulométrie est unimodale avec un maximum situé à  $d = d_n$ . Mais pour  $d_n < 0,04 \mu\text{m}$  apparaît, comme sur les courbes 1 et 3, une légère bimodalité dont le second maximum correspond à  $d_n$ . Cette bimodalité peut être expliquée par deux phénomènes :

- d'abord, comme nous le verrons au paragraphe V-2,

une certaine dispersion des aérosols produits.

- ensuite, l'action combinée de l'augmentation de la probabilité  $f$  de charge avec la taille des particules et des charges multiples portées par les grosses particules.

En effet, soient  $N_i$  la densité du nuage d'ions de charge dans le compteur électrique et  $t$  la durée de charge. Pour un produit  $N_i t = 3 \cdot 10^{-7}$  comme dans le compteur utilisé, PUI (81) montre que :

1°) la probabilité de charge, négligeable pour des noyaux de  $2 \cdot 10^{-7}$  cm de diamètre, devient pratiquement égale à 100 % lorsque la taille atteint  $2 \cdot 10^{-6}$  cm.

2°) Le pourcentage de particules portant des charges multiples augmente rapidement avec la taille comme on peut voir sur la figure III-7 où toutes les particules de  $d > 4 \cdot 10^{-6}$  cm portent plusieurs charges.

On comprend alors la possibilité d'apparition de bimodalités fortuites. Pour ne pas en tenir compte lors de l'étude d'un aérosol quelconque, nous effectuerons sur chaque bimodalité observée un test de validité de la façon suivante :

- Soient  $E_1$  et  $E_2$  (Fig. III-6) les ordonnées du pre-

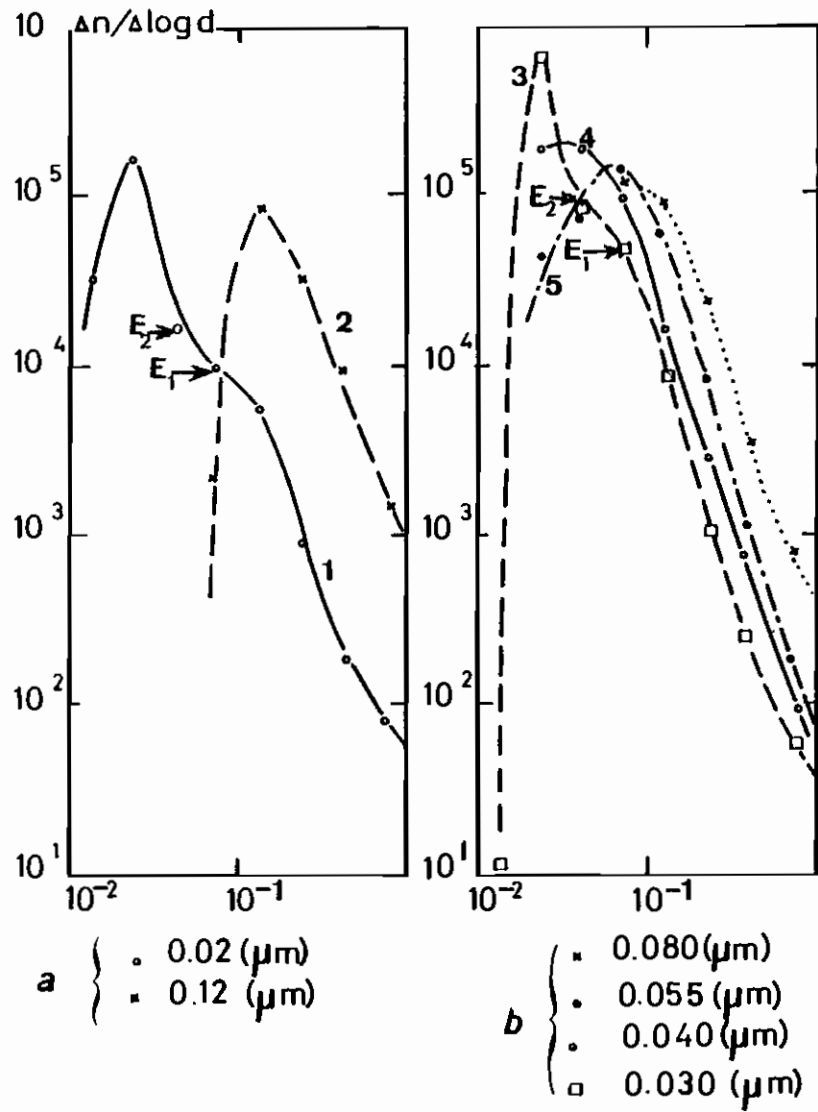


Fig III-6: TEST du COMPTEUR ELETRIQUE

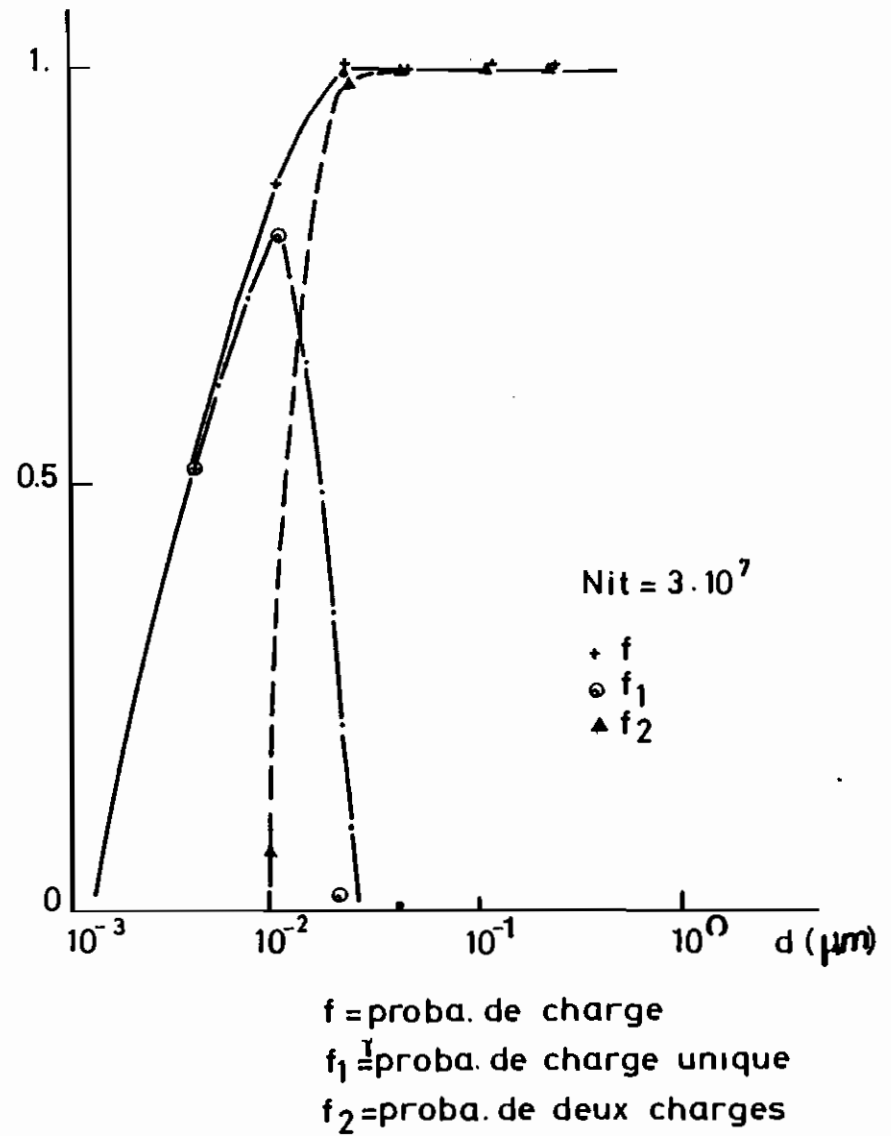


Fig III-7: PROBABILITE de CHARGE DES PARTICULES

mier maximum et du minimum central ; les courbes 1 et 3 donnent respectivement :

$$\left(\frac{E_2}{E_1}\right)_1 = 1,5$$

$$\left(\frac{E_2}{E_1}\right)_2 = 1,8$$

Si pour un aérosol donné le rapport  $E_2/E_1$  est supérieur ou égal à 1,5, la bimodalité n'a probablement pas d'existence réelle.

Par contre, dans la pratique, nous admettrons comme vraisemblables les bimodalités pour lesquelles  $E_2/E_1 < 1$ .

## 2. RESULTATS PRELIMINAIRES.

Une étude préliminaire de la concentration  $n_0$  de l'aérosol atmosphérique à Paris a montré des variations importantes au cours du temps. Même pendant la nuit,  $n_0$  peut passer du niveau moyen (60 000 particules  $\text{cm}^{-3}$ ) à plus de 100 000 particules  $\text{cm}^{-3}$ .

Ces variations sont représentées sur la figure III-8 où la zone MN de relative stabilité de  $n_0$  dure moins de deux minutes. Or, étant donné le volume des batteries de diffusion et les débits d'aspiration utilisés, le temps nécessaire pour effectuer une série complète de mesures est de 8 minutes ; ce qui nous a conduit à utiliser une



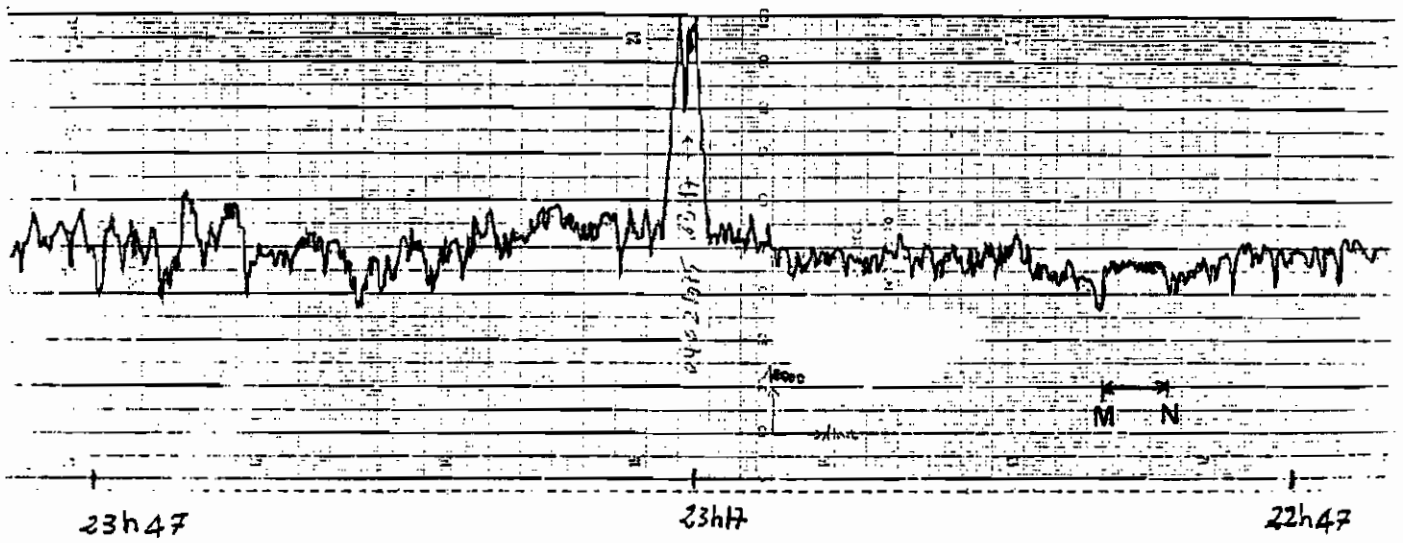
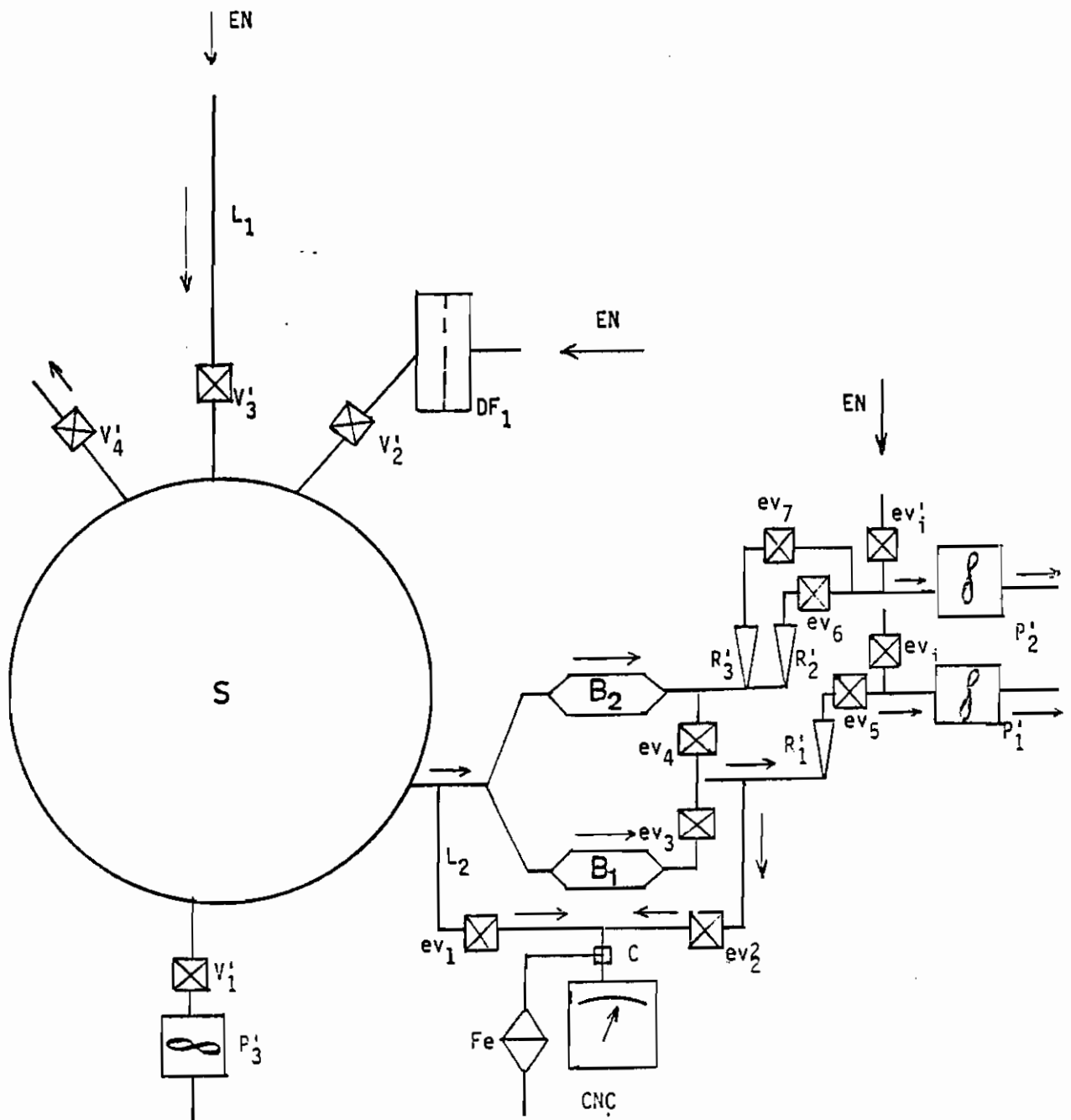


Fig. III- 8 : VARIATION DE  $n_0$  EN FONCTION DU TEMPS A JUSSIEU

sphère S de stabilisation de 800 l où l'air atmosphérique est aspiré à  $25 \text{ m}^3/\text{h}$  par une pompe  $P'_3$  (Fig. III-9). S communique avec l'atmosphère par l'intermédiaire du tuyau  $L_1$  et avec le CNC par un autre tuyau  $L_2$ . A la fin de l'aspiration qui dure environ 5 min, on coupe  $P'_3$  et on ferme le robinet  $v'_1$  avant d'effectuer les mesures. Nous donnons ci-dessous quelques résultats obtenus par microscopie électronique, comptage électrique et batteries de diffusion.

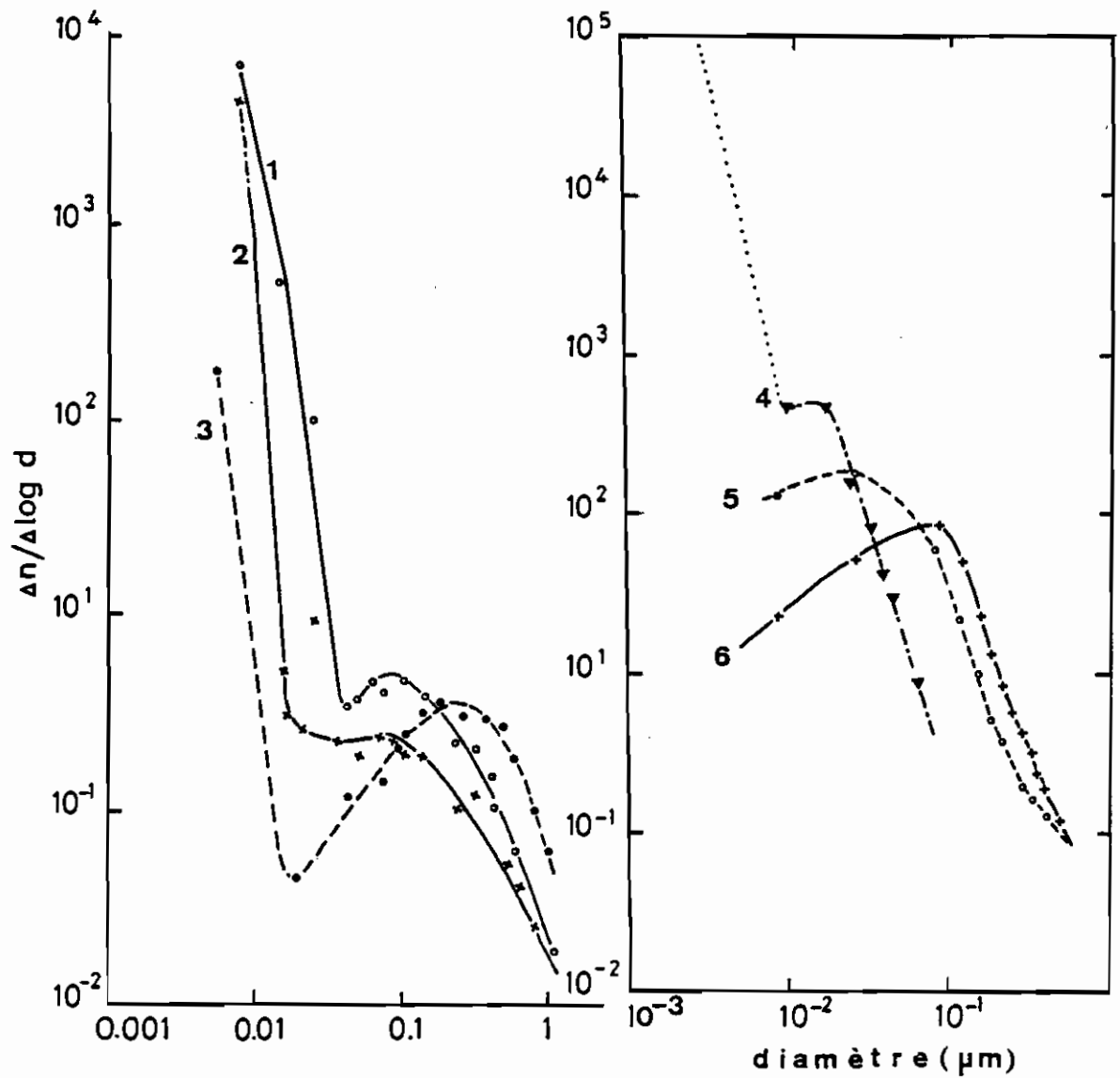
### 2.1. Granulométrie au microscope électronique.

A Jussieu, des prélèvements que nous avons effectués par le moyen du précipitateur thermique nous ont permis d'établir par le microscope électronique une distribution bimodale avec un maximum à  $10^{-5}$  cm de diamètre et un autre à  $8.10^{-7}$  cm de diamètre. La figure III-10 représente ces résultats en échelle logarithmique. La courbe 3 est un exemple de distribution obtenue à partir des prélèvements sur membrane nucléopore à Guyancourt. On y observe également deux modes de diamètres moyens  $d_1$  et  $d_2$  égaux respectivement à  $2.10^{-5}$  cm et  $8.10^{-7}$  cm. Alors que le second maximum est placé comme dans les résultats de Jussieu, le premier a un diamètre double. Cette différence n'est pas nécessairement significative puisque, dans un même site, la granulométrie peut varier au cours du temps comme le montrent sur la figure III-10-b les courbes obtenues à FONTENAY-aux-ROSES (7). Les courbes 4, 5 et 6 provien-



- |                   |  |   |
|-------------------|--|---|
| C : commutateur   | ev : électrovanne                              | AE : sortie vers l'AEA                      |
| EN : entrée d'air | S : sphère                                     | CNC : compteur de noyaux                    |
| V' : vanne        | B <sub>1</sub> , B <sub>2</sub> : batteries    | DF <sub>1</sub> : dièdres filtrant          |
| Fe : filtre       | R' <sub>1</sub> , R' <sub>2</sub> : rotamètres | P' <sub>1</sub> ...P' <sub>i</sub> : pompes |

Fig. III-9 : ENSEMBLE DE PRELEVEMENT-MESURE



a) Jussieu 3/12/74 .12h .15h +22/6/75 10h 15h  
 Guyancourt 31/10/75 .11h b) Fontenay. 7/10/76 10h 15h  
 13/10/76 11h 16h

Fig III-10 :SPECTRES au MICROSCOPE ELECTRONIQUE

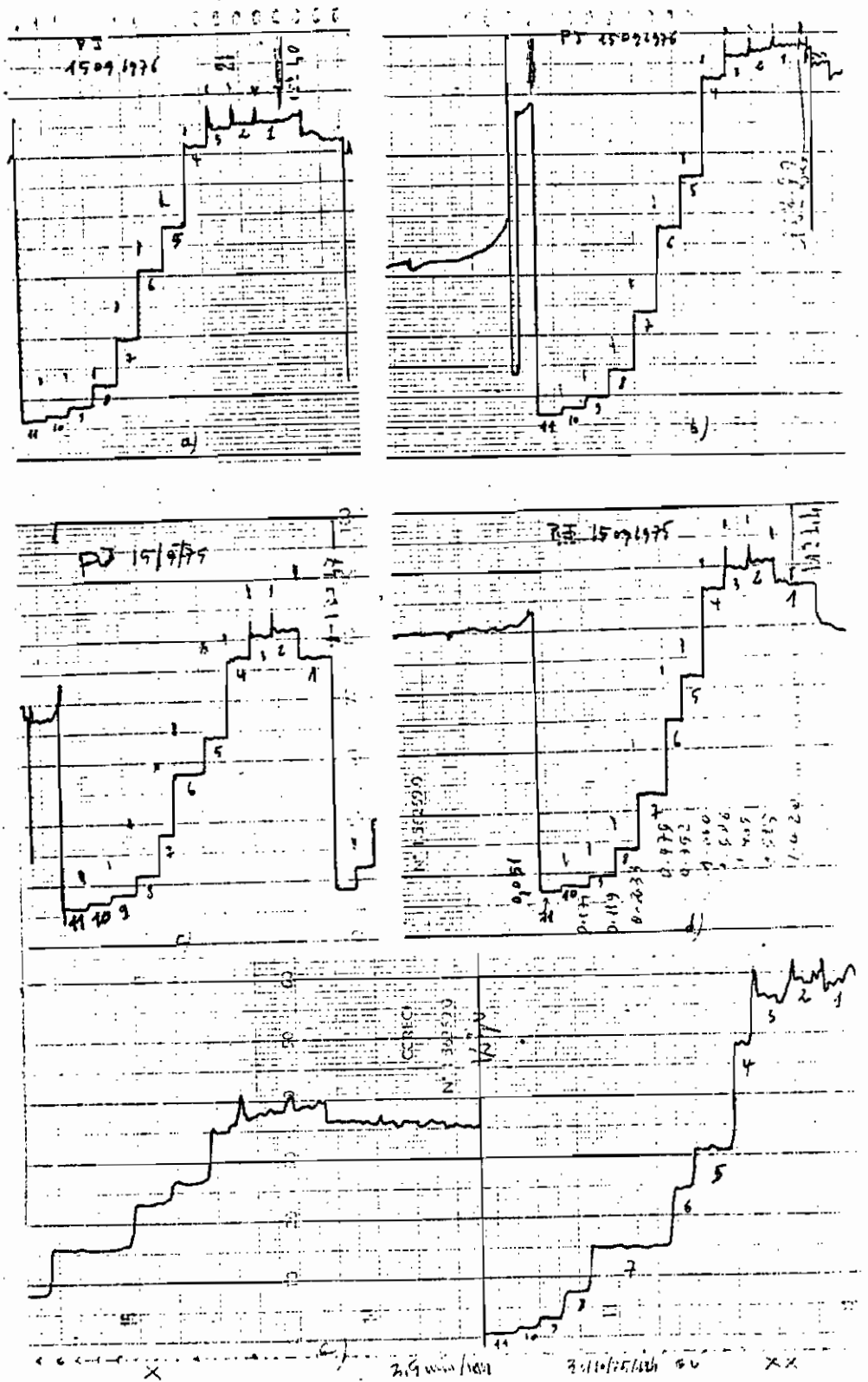


Fig. III-11 : REPONSE DE L'ANALYSEUR ELECTRIQUE

nent des mesures effectuées au même endroit en trois jours, mais durant la même période de la journée (10 h à 15 h) ; les déplacements du premier maximum qu'on observe sur ces courbes sont dus aux variations de l'intensité des principales sources d'aérosol urbain (circulation automobile, foyers domestiques ou industriels). Le second mode, de diamètre moyen inférieur à  $10^{-6}$  cm, qui n'apparaît pas toujours proviendrait des actions photochimiques.

## 2.2. Mesures avec le compteur électrique.

La figure III-11 représente les variations du courant de décharge des particules en fonction du temps pour les différents canaux de l'analyseur électrique d'aérosol (AEA). Les courbes a et b permettent l'établissement d'une granulométrie en dix classes dans l'intervalle ( $4.5 \cdot 10^{-7}$  cm,  $7.5 \cdot 10^{-5}$  cm) où la décroissance du signal est continue entre le premier et le onzième canal. Par contre, sur les courbes c, d et e, la différence des intensités du courant étant négative entre le second et le premier canal, ce dernier n'est pas utilisable et on n'obtient alors qu'une distribution en 9 classes entre  $7.5 \cdot 10^{-7}$  cm et  $7.5 \cdot 10^{-5}$  cm.

Deux exemples de granulométries obtenues à Jussieu sont indiqués sur la figure III-12 où l'application du test  $E_2/E_1$  déduit de l'étalonnage (paragraphe 1) montre que :

- Pour la courbe 1,

$$\frac{E_2}{E_1} = 1,12$$

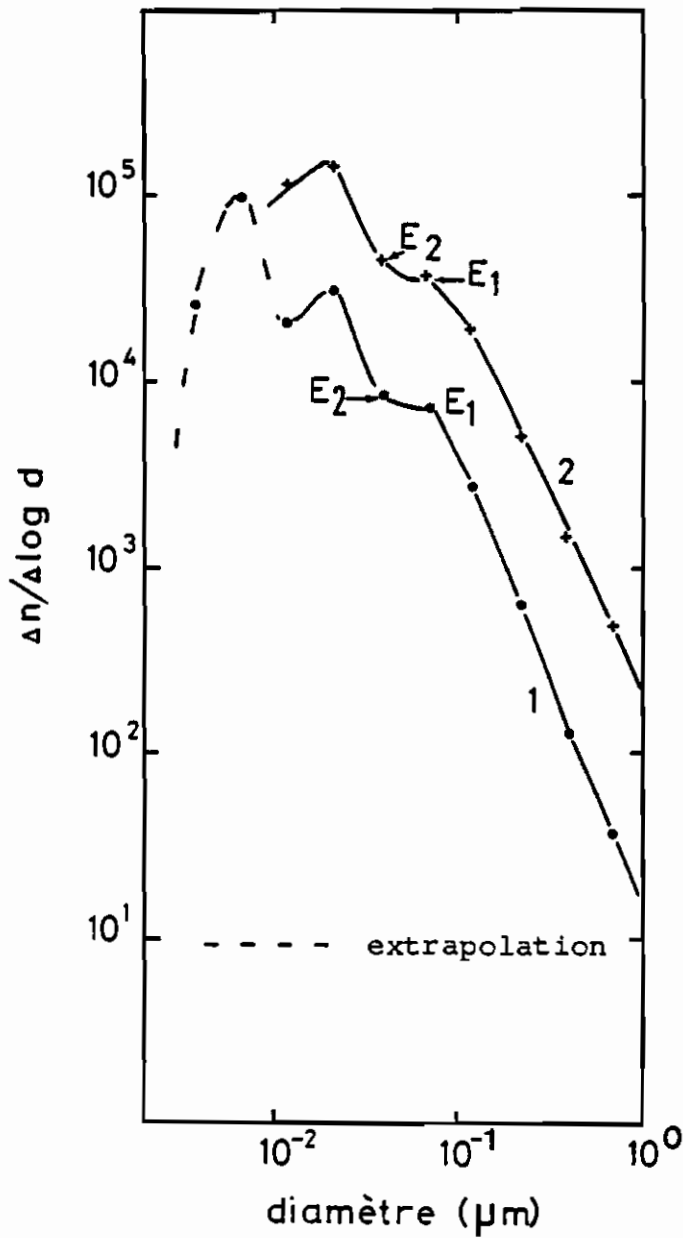
et l'existence des trois modes n'est pas vraisemblable ;

- de même, pour la courbe 2 où le rapport  $E_2/E_1$  est égal à 1.25, l'existence de la bimodalité n'est également pas possible.

Avec les résultats de Brest (Fig. III-13) on voit que les maxima de la courbe 2 sont réels puisque  $E_2/E_1$  est égal à 0.9. Par contre, avec la courbe 1,  $E_2/E_1$  étant égal à 2, le premier maximum ( $8 \cdot 10^{-6}$  cm) n'est pas vraisemblable, et la distribution qu'elle représente ne comporterait donc que deux modes centrés sur  $8 \cdot 10^{-7}$  cm et  $2.4 \cdot 10^{-6}$  de diamètre.

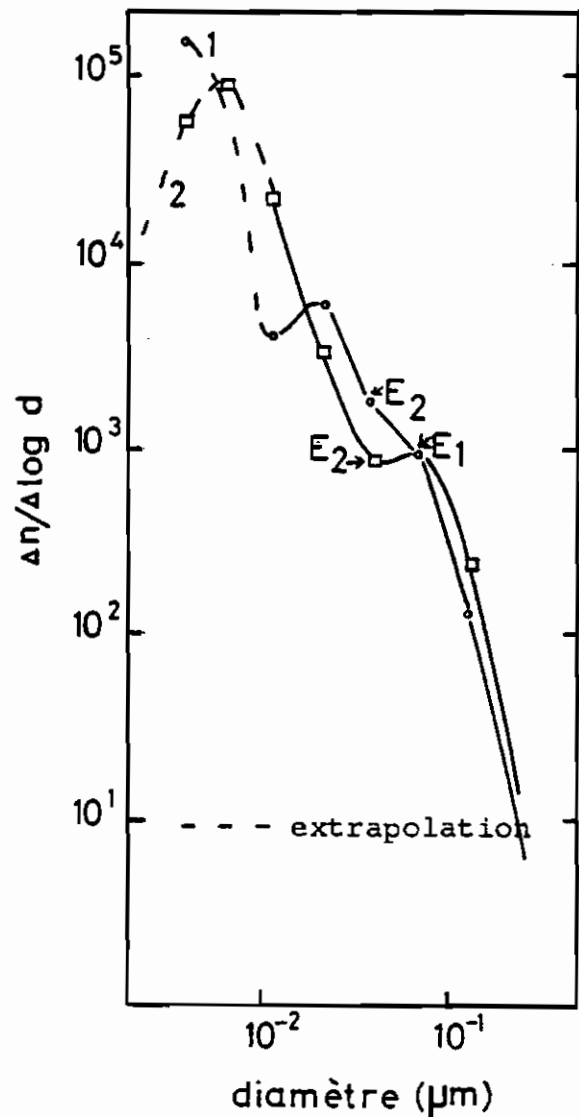
A Guyancourt, la granulométrie semble présenter également deux ou trois modes (Fig. III-14) de diamètres moyens égaux respectivement à  $8 \cdot 10^{-6}$  cm,  $2.4 \cdot 10^{-6}$  cm et  $d = 8 \cdot 10^{-7}$  cm.

Sur la figure III-15 sont représentées les courbes moyennes des observations faites à Brest, Guyancourt et Paris. On constate que les résultats de Paris et Guyancourt sont comparables et différents de ceux de Brest où la pollution est moins importante.



Jussieu • 15/9/75 16 h 16  
 + 23/9/75 15 h 11

Fig III-12: GRANULOMETRIE au  
 COMPTEUR ELECTRIQUE



Brest 15/10/75 • 17h00  
 □ 18h35

Fig III-13: DISTRIBUTIONS  
 INSTANTANÉES



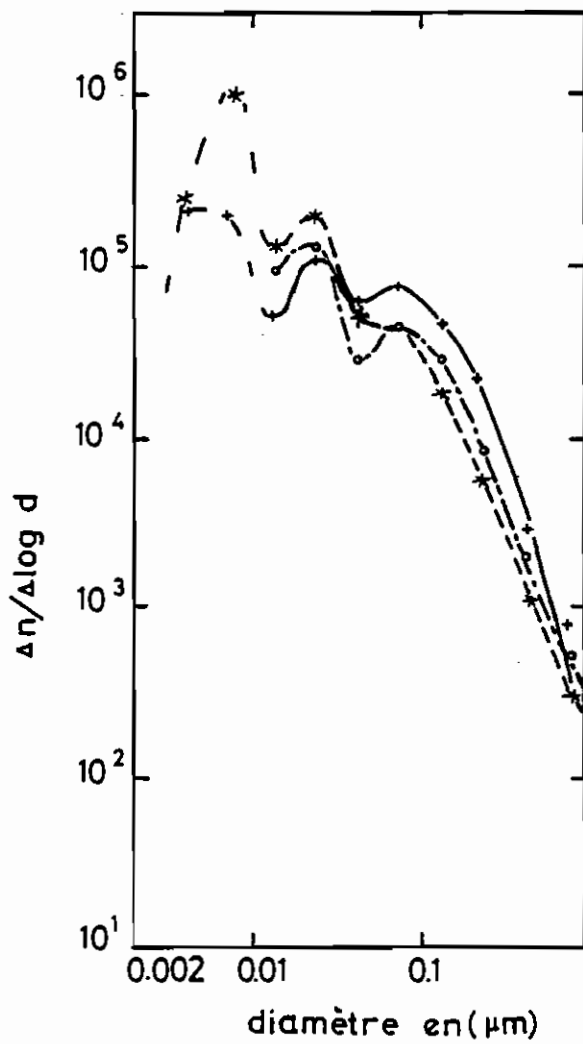
### 2.3. Résultats des batteries de diffusion.

Les concentrations  $n_0$  et  $n$  sont mesurées par le CNC à l'entrée et à la sortie des batteries de diffusion pour différents débits  $Q_1$  d'aspiration de l'air atmosphérique à travers ces batteries. On en déduit le rapport  $n/n_0$  en fonction de  $Q$ . Pour des valeurs de  $n$  et  $n_0$  variant entre 1000 et 100 000 particules. $\text{cm}^{-3}$  on a, sur l'échelle 100 000 du galvanomètre de lecture, une incertitude absolue de 500. Lorsque les concentrations indiquées par cette échelle passent de 10 000 à 100 000 particules.  $\text{cm}^{-3}$ , l'incertitude relative  $\Delta n/n_0$  varie entre 5 % et 1 %. Nous prendrons dans nos calculs la valeur maximale de 5 %.

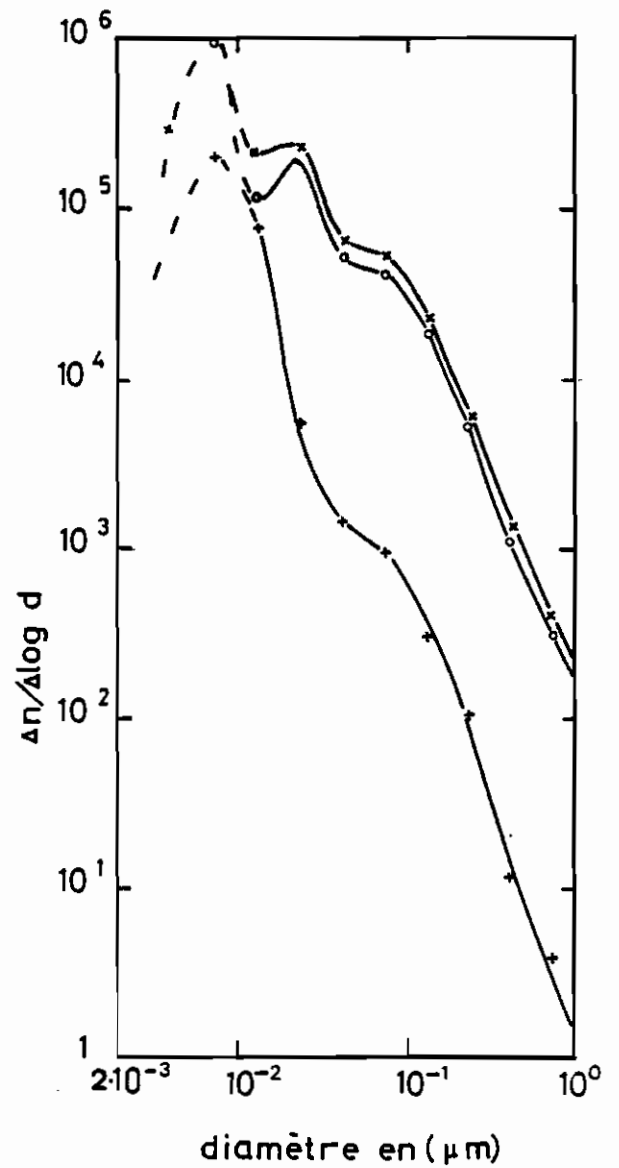
Dans le tableau III-1 sont indiqués des exemples de valeurs de  $n/n_0$  en fonction du débit  $Q$  pour un aérosol atmosphérique à Paris le 3 février 1975 vers 8 h 45.

TABLEAU III-1 : ATTENUATIONS EN FONCTION DU DEBIT

$Q$ (l /mn)	6	18	40	60	80	120	200
$n_0$	70 000	70 000	68 000	72 000	69 000	70 000	71 000
$n$	14 500	29 000	38 000	43 000	45 000	49 000	54 000
$n/n_0$	0.208	0.418	0.567	0.603	0.650	0.700	0.760



Guyancourt + 24/10/75 11h55  
 o 29/10/75 16h18  
 \* moyenne  
 - - - extrapolations



+ Brest  
 o Guyancourt  
 ■ Paris  
 - - - extrapolations

Fig III-14 DISTRIBUTION au COMPTEUR ELECTRIQUE

Fig III-15 DISTRIBUTIONS MOYENNES au COMPTEUR ELECTRIQUE

L'observation de quelques courbes représentatives (Fig. III-16) de l'atténuation  $n/n_0$  de la concentration de l'aérosol lors de son passage à travers les batteries de diffusion montre que, pendant la nuit, pour un débit donné, le rapport  $n/n_0$  croît régulièrement jusqu'à un maximum qui est atteint vers 6 heures du matin ; ce qui traduit un grossissement de l'aérosol puisque les particules diffusent d'autant moins qu'elles sont grosses.

Lorsque le débit  $Q$  tend vers l'infini, le coefficient de diffusion apparent de l'aérosol tend vers son coefficient de diffusion moyen  $D$  que nous pouvons alors déterminer à partir des équations de GORMLEY et KENNEDY (42). En prenant  $Q = 200$  l/min, nous pouvons alors déterminer  $D$  à partir de l'équation II-18.

$$\frac{n}{n_0} = a_1 \exp(-b_1 \mu) + a_2 \exp(-b_2 \mu) + \dots$$

En se limitant au premier terme de cette équation, on a :

$$\frac{n}{n_0} = a_1 \exp(-\mu_1 D) \quad (\text{III-3})$$

avec

$$\mu_1 = b_1 N \frac{l_1 b}{aQ}$$

$$a_1 = 0,9104$$

$$b_1 = 1,885$$

$$N = \text{nombre de plaques de la batterie}$$

- $l_i$  = longueur des plaques  
 $b$  = largeur des plaques  
 $a$  = demie distance interplaque  
 $Q$  = débit.

L'équation III-3 donne une première approximation de  $\bar{D}$ .

$$\bar{D} \approx \frac{1}{\mu_1} \text{Log} \frac{a_1}{n/n_0}$$

En introduisant cette valeur approchée de  $\bar{D}$  dans l'équation II-18, on détermine, par un calcul itératif, la valeur précise de  $\bar{D}$ , d'où le diamètre moyen  $\bar{d}$ .

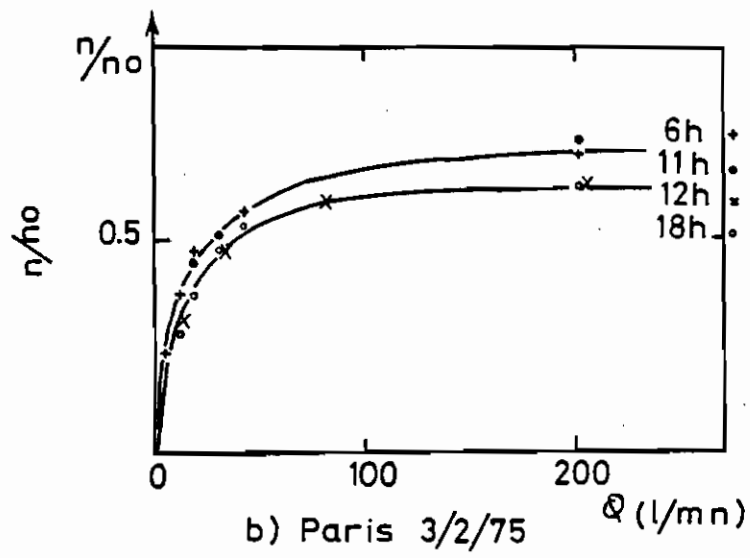
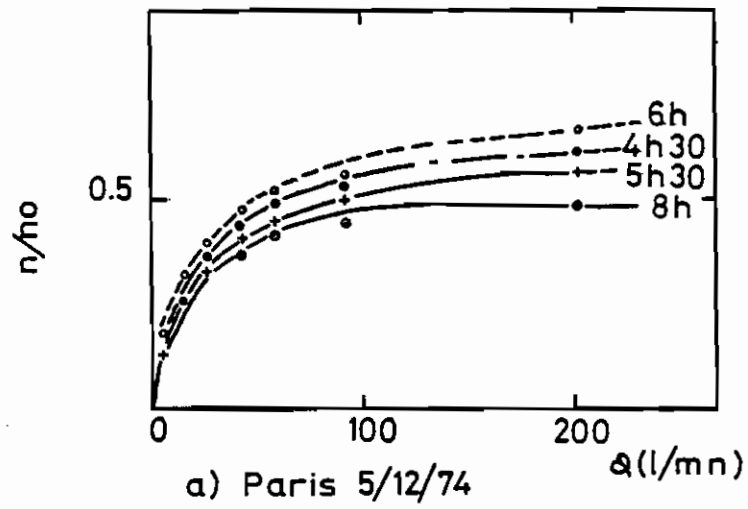
Le tableau III-2 donne quelques valeurs de  $\bar{d}$  à Jussieu. Malgré une certaine dispersion de ces résultats, on observe généralement une baisse de  $\bar{d}$  à partir de 7 h, suivie d'une hausse progressive jusqu'à 11 h 30. Ensuite, c'est de nouveau la baisse à 12 h et 14-15 h avant que la croissance recommence jusqu'à 17-18 h. Enfin, entre 18 et 20 h, on a une nouvelle chute après laquelle  $\bar{d}$  croît plus régulièrement.

Il existe donc, au cours de la journée, des oscillations du diamètre moyen que nous pouvons représenter schématiquement et de façon purement qualitative sur la figure III-17. Les minima se placent peu après les heures de grande circulation automobile qui favoriserait donc la production des particules ultrafines, soit directement, soit par réaction en phase gazeuse après photoactivation des gaz d'échappement.

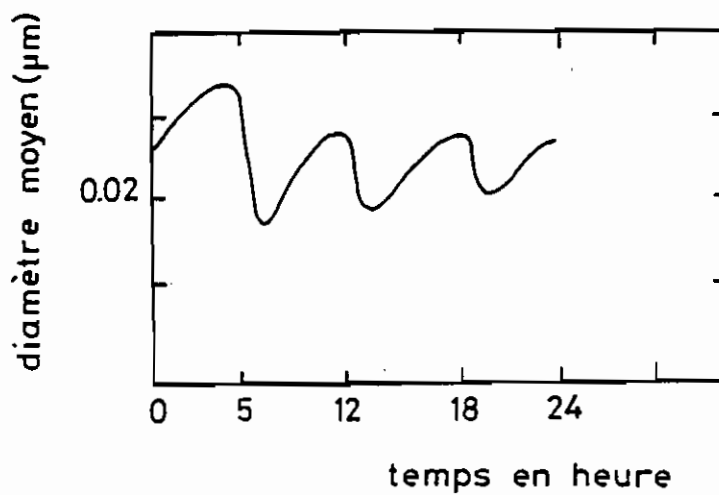
TABLEAU III-2

DIAMETRE MOYEN A JUSSIEU

DATE	HEURE	DIAMETRE ( $\mu\text{m}$ )	$n_0$ (particules/cm <sup>3</sup> )
17/11/74	7	0.0240	74 000
	12	0.0235	97 000
	19	0.0235	88 000
5/12/74	4	0.0170	54 000
	5	0.0185	61 000
	6	0.0200	70 000
	7.50	0.0170	137 000
	8	0.0150	200 000
3/02/75	7	0.0230	51 000
	9	0.0270	70 000
	12	0.0190	69 000
	16	0.0180	55 000
	19	0.0230	60 000
11/06/75	0	0.0250	72 000
	10	0.0380	112 000
	11	0.0230	100 000
	12	0.0260	108 000
	16	0.0200	80 000
	17	0.0225	95 000
	18	0.0240	87 000
23	0.0260	80 000	
19/06/75	17	0.0200	132 000
	19	0.0280	108 000
24/06/75	17	0.0265	132 000
	18	0.0200	155 000
	19	0.0180	190 000
	20	0.0245	125 000
24/07/75	9	0.0110	240 000
	10	0.0137	170 000
	11.50	0.0185	105 000
	13	0.0110	160 000
5/08/75	9	0.0190	150 000
	12	0.0255	130 000
	17	0.0320	100 000
	18	0.0255	132 000
23/09/75	12	0.0265	112 000
	15	0.0320	80 000
	16	0.0240	82 000



FigIII-16: ATTENUATIONS  $n/n_0$



FigIII-17: VARIATIONS de  $\bar{d}$  en FONCTION du TEMPS

Le dépouillement, par la méthode de MAIGNE, des données expérimentales obtenues sous la même forme que le tableau III-1, donne la granulométrie de l'aérosol. Nous considérerons comme tout à fait satisfaisants les traitements numériques pour lesquels l'écart EC entre les valeurs expérimentales et théoriques du rapport  $n/n_0$  des concentrations en aval et en amont des batteries est inférieur ou égal à l'incertitude expérimentale de 5 % (Fig. III-18).

$$E = \frac{100}{\left(\frac{n}{n_0}\right)_{\text{exp}}} \left[ \left(\frac{n}{n_0}\right)_{\text{th}} - \left(\frac{n}{n_0}\right)_{\text{exp}} \right]$$

Nous admettrons également comme valables les résultats où une ou deux valeurs de EC sont supérieures à 5 %, avec cependant la condition :

$$E \leq 10 \%$$

Le tableau III-3 montre un exemple de résultat où les écarts sont tous inférieurs à 5 %. Dans la colonne 1 sont portés les diamètres correspondant au traitement qui donne, dans les différentes classes de taille, les probabilités F de présence des particules. Ces probabilités sont indiquées en % dans la deuxième colonne. A partir de ces valeurs de F, on détermine les valeurs théoriques  $\left(\frac{n}{n_0}\right)_{\text{th}}$  et les différents écarts EC.

On voit dans cet exemple que la somme  $\sum F$  des probabilités est égale à 0,89 ; les résultats obtenus ici expliquent

TABLEAU III-3 : SORTIE NUMERIQUE DES RESULTATS (GU 30/ 9/75,12h)

CLASSES DIAMETRES ( $\mu\text{m}$ )	POURCENTAGES PARTICULES (F X 100)	MESURES RESTITUEES	MESURES DONNEES	ECARTS EN %
0.1500				
	6.33			
0.0865		0.00332		
	6.87			
0.0780		0.00617		
	13.53			
0.0689		0.01260		
	23.66			
0.0588		0.02851	0.03000	- 4.98
	4.56			
0.0472		0.06608		
	3.16			
0.0404		0.10529		
	2.39			
0.0359		0.14165		
	1.91			
0.0326		0.17410	0.17500	- 0.51
	1.68			
0.0301		0.20278		
	1.43			
0.0281		0.22812		
	2.33			
0.0250		0.27069		
	1.85			
0.0228		0.30509	0.31000	- 1.59
	1.52			
0.0210		0.35348		
	1.29			
0.0196		0.35750		
	2.06			
0.0175		0.39620		
	1.63			
0.0159		0.42643	0.42500	0.34
	1.75			
0.0142		0.46170		
	1.37			
0.0129		0.48916		
	1.44			
0.0117		0.51801		
	1.15			
0.0107		0.54097	0.53200	1.69
	1.77			
0.0092		0.57945		
	1.42			
0.0081		0.60969		
	1.90			
0.0068		0.65025		
	2.02			
0.0054		0.69247	0.69200	0.07

$\Sigma F = 0.89$



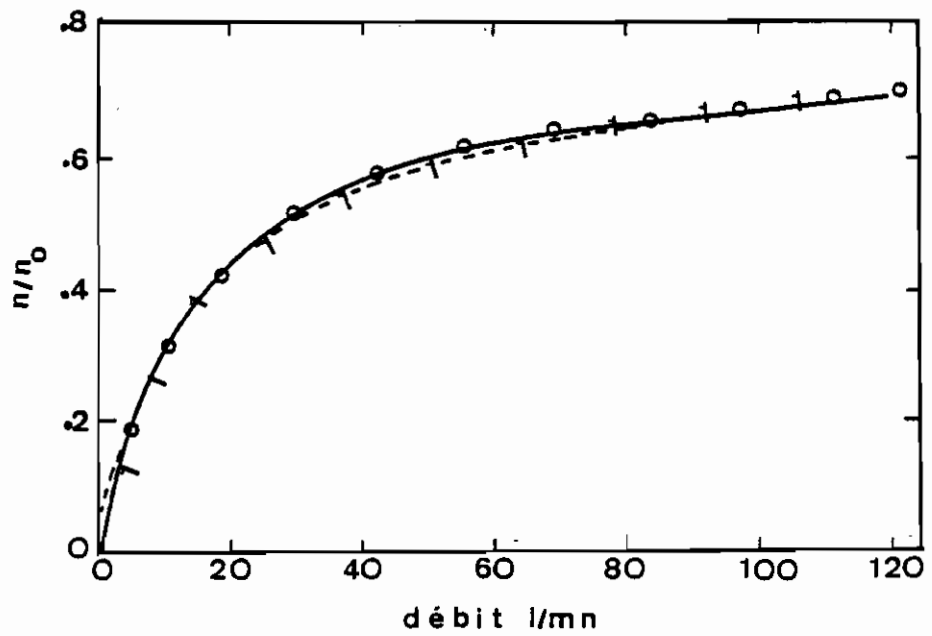
donc seulement 89 % du spectre ; les différents traitements numériques que nous avons effectués conduisent à des sommes  $F$  inférieures à l'unité.

Dans la figure III-18 sont représentés deux exemples de distributions unimodales obtenues à Paris, l'une la nuit (Fig. III-18-b) et l'autre le jour (Fig. III-18-c), les diamètres géométriques moyens ( $d_g$ ) étant respectivement  $26.10^{-7}$  cm. La granulométrie peut également être bimodale (Fig. III-19), les maxima étant alors compris entre  $5.10^{-7}$  cm et  $7.10^{-6}$  cm. Entre ces deux valeurs extrêmes, la distribution peut enfin présenter un troisième mode situé entre  $2.10^{-6}$  cm et  $4.10^{-6}$  cm (Fig. III-20).

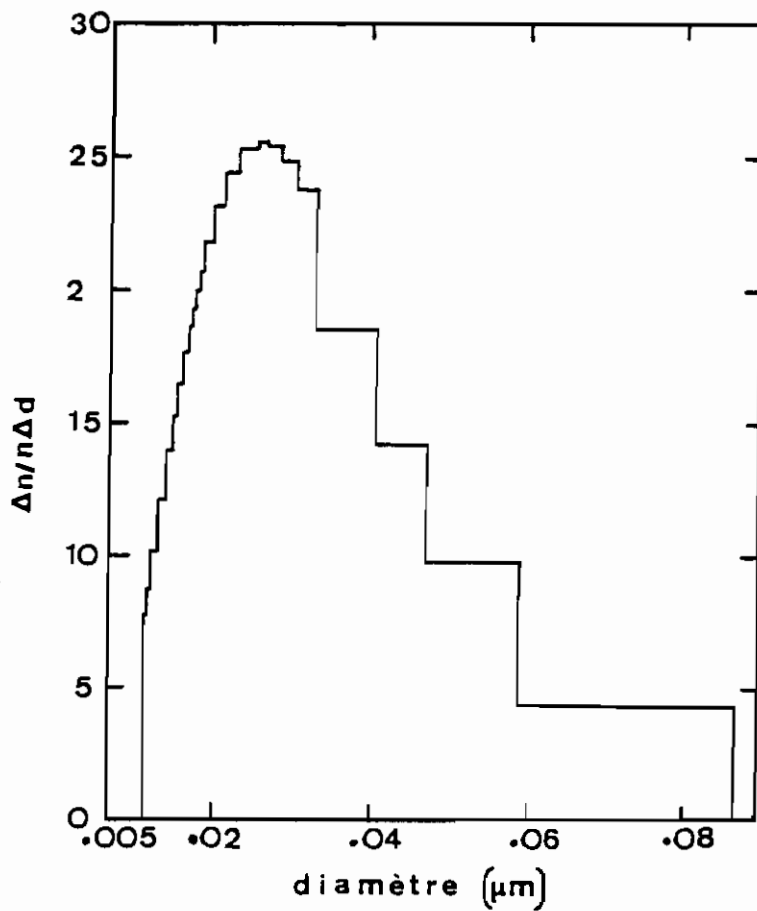
Sur les histogrammes que nous venons de présenter, on observe toujours, dans le cas d'une plurimodalité, une discontinuité (saut brusque d'un maximum à un minimum) au passage d'un mode à l'autre. Par ailleurs, la proportion des fines particules (rayon  $< 2.10^{-6}$  cm) est faible.

Dans le tableau III-4 sont indiquées quelques positions des maxima pour des granulométries obtenues à Paris et à Guyancourt. La Figure III-21 représente enfin des courbes de variation de la "densité" ( $\frac{\Delta n}{n \Delta d}$ ) des particules dans les différentes classes en fonction du diamètre.

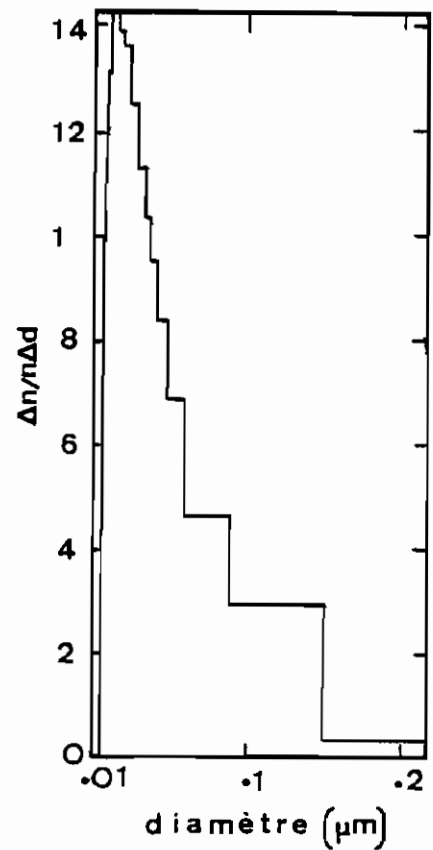
Les différentes techniques que nous avons utilisées pour l'analyse granulométrique de l'aérosol atmosphérique nous ont montré que celui-ci pouvait présenter un, deux ou trois modes. Après une critique succincte des résultats obtenus grâ-



a) atténuations expérimentale (o) et recalculée (l)



b) Paris (13/11/74 vers Ohl2)

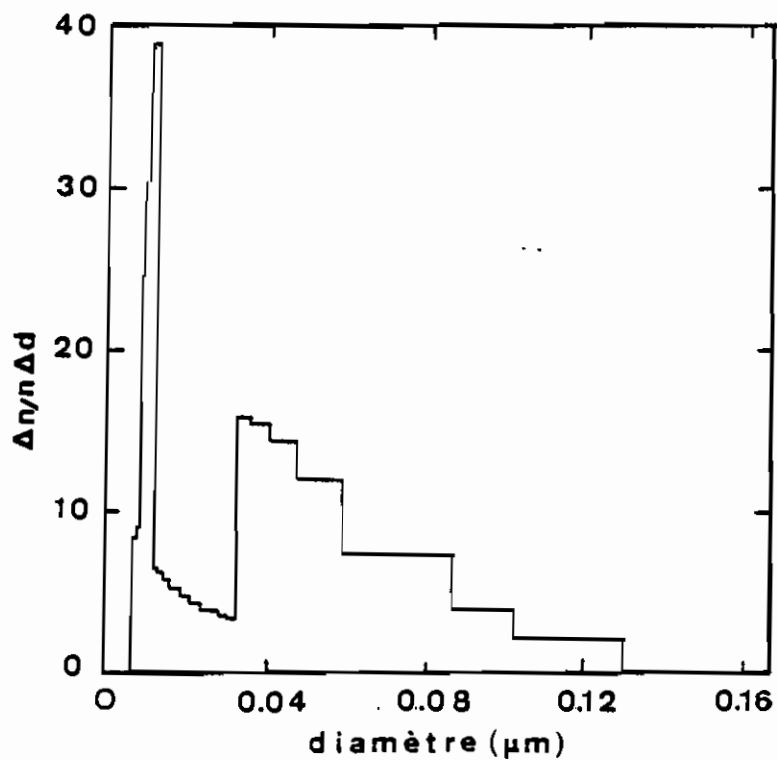


c) Paris (3/12/74 vers 16h30)

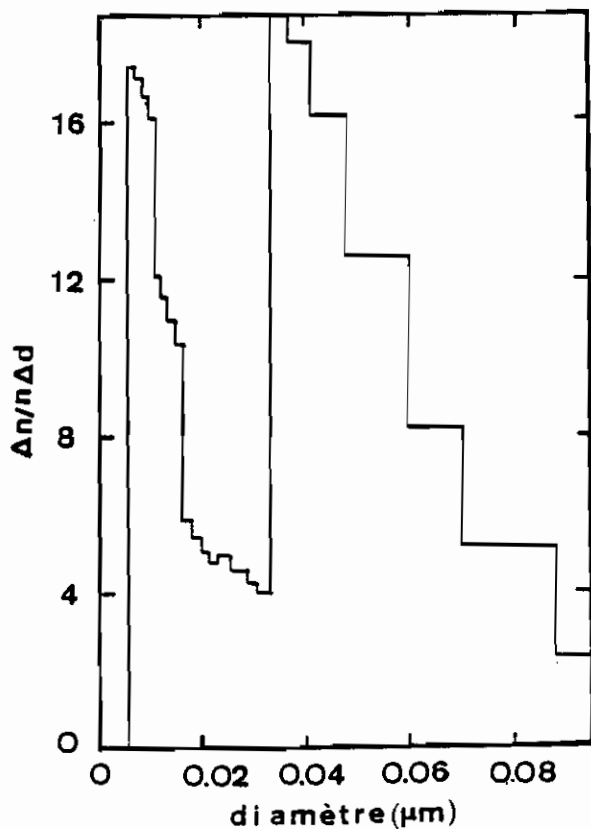
Fig. III-18 : ATTENUATIONS ET HISTOGRAMMES

TABLEAU III - 4 : EXEMPLES DE MAXIMA

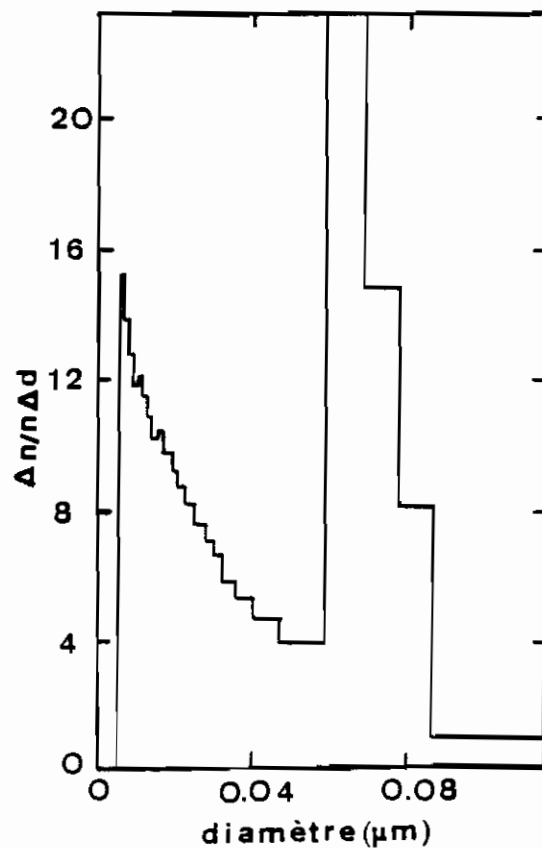
Lieu et date		Nb. de modes	Position des maxima		
<u>PARIS</u>					
12/11/1974	17 H 30	2	0,0120	0,0240	
12/11/1974	23 H 15	1		0,0210	
12/11/1974	23 H 45	2	0,0180	0,0340	
13/11/1974	0 H 12	1		0,0260	
28/11/1974	3 H 45	1		0,0342	
3/12/1974	11 H 30	2	0,0058		0,0900
4/12/1974	12 H 15	3	0,0080	0,0600	0,0900
4/12/1974	14 H 45	3	0,0120	0,0220	0,0650
4/12/1974	16 H 15	2	0,0060	0,0350	
4/12/1974	16 H 30	1		0,0150	
3/02/1975	8 H 45	2	0,0110	0,0350	
14/06/1975	23 H 26	2	0,0100		0,0900
15/06/1975	8 H 56	2	0,0056	0,0350	
17/06/1975	8 H 30	2	0,0060	0,0400	
20/06/1975	18 H 18	2	0,0070	0,0400	
23/06/1975	10 H 30	3	0,0056	0,0350	0,0800
23/06/1975	14 H 23	2	0,0058	0,0360	
26/06/1975	8 H 26	2		0,0150	0,0630
26/06/1975	11 H 25	2	0,0060		0,0650
15/09/1975	14 H 50	2	0,0055	0,0350	
23/09/1975	11 H 50	2	0,0110		0,0650
23/09/1975	12 H 12	3	0,0060	0,0350	0,0700
23/09/1975	15 H 25	2	0,0110		0,0650
23/09/1975	16 H	2	0,0062	0,0350	
<u>GUYANCOURT</u>					
29/10/1975	16 H 20	3	0,0062	0,0350	0,0650
30/10/1975	11 H 30	3	0,0061	0,0300	0,0650
30/10/1975	13 H	2	0,0060		0,0640
30/10/1975	13 H 30	2	0,0060		0,0640
30/10/1975	15 H 30	2	0,0060		0,0650
31/10/1975	11 H	2	0,0061	0,0240	
	12 H 30	3	0,0060	0,0240	0,0650



a) Paris (3/12/75 vers 8h45)



b) Paris 23/9/75 vers 10h



c) Guyancourt (30/10/75 vers 13h)

Fig. III-19 : HISTOGRAMMES

ce à ces techniques, nous indiquons ci-dessous les moyens que nous choisissons pour des études ultérieures.

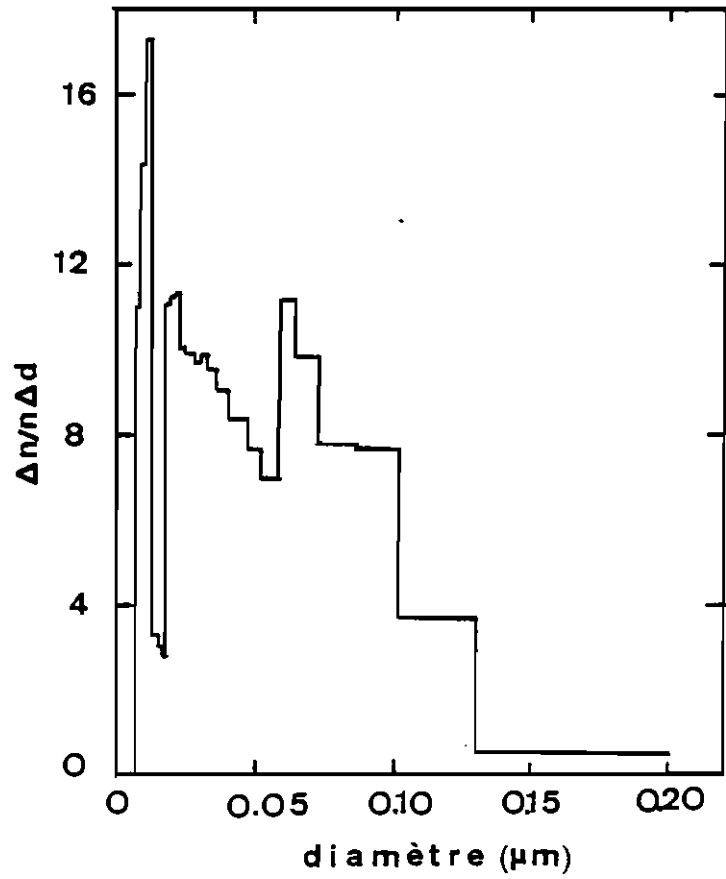
### 3. CHOIX DES MOYENS D'ETUDE.

#### 3.1. Quelques réserves sur les techniques d'étude.

##### 3.1.1. Microscopie électronique.

Bien que permettant d'accéder jusqu'aux dimensions moléculaires, en particulier quand on prélève par précipitateur thermique, le microscope électronique est d'un emploi lourd et délicat pour la détermination des granulométries d'aérosols à cause du grand nombre d'opérations qui sont alors mises en oeuvre. Les résultats, qui proviennent de l'intégration sur une ou plusieurs heures, peuvent par ailleurs dépendre de l'observateur qui doit, pour obtenir des spectres corrects surtout dans le domaine des particules ultra-fines, avoir une bonne expérience. Les courbes données sur la Figure III-10 correspondent à des concentrations  $n$ , comprises entre 2 000 et 10 000 particules.cm<sup>-3</sup> et indiquent des "densités"  $\Delta n/\Delta \log d$  plus faibles que celles obtenues par le compteur électrique ou l'ensemble CNC - batteries de diffusion.

a) Paris



b) Guyancourt

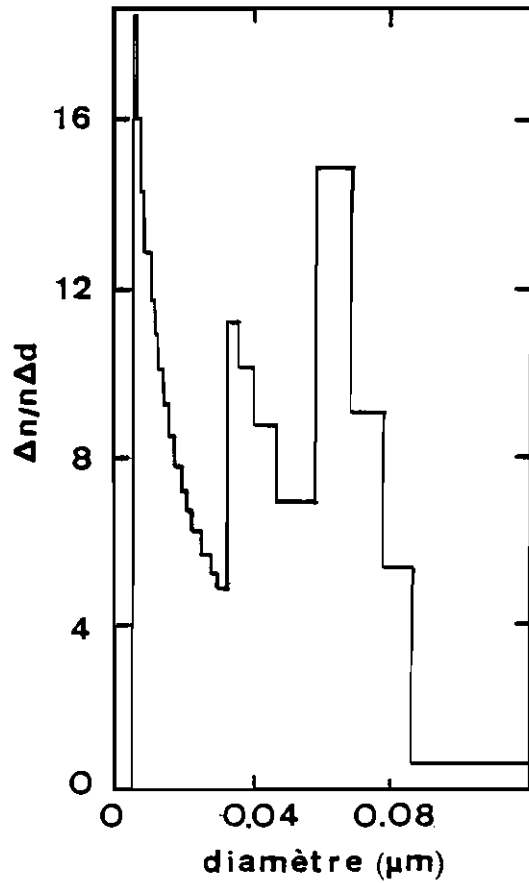


Fig. III-20 : DISTRIBUTIONS POLYMODALES

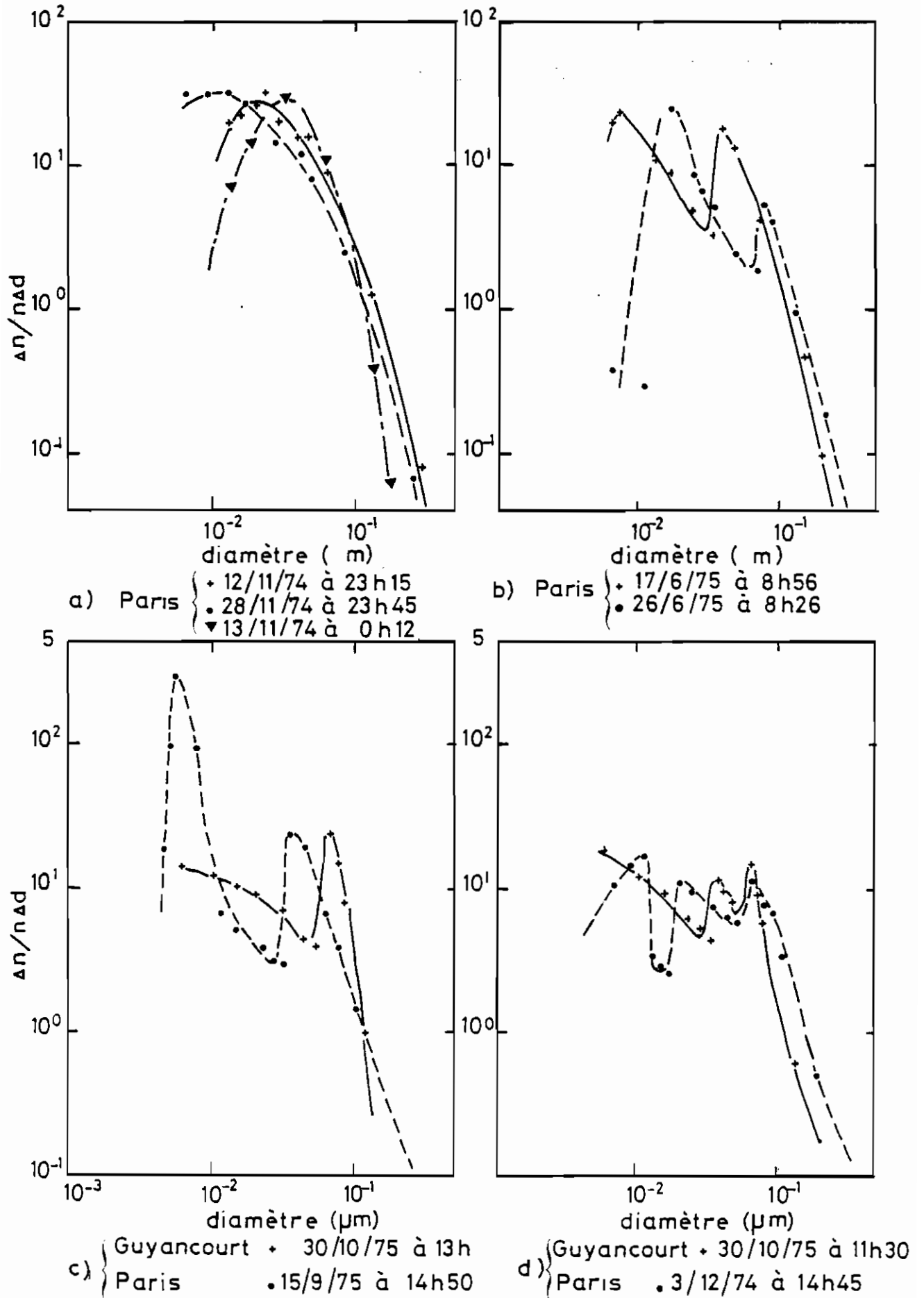
### 3.1.2. Compteur électrique.

La détermination de la granulométrie d'un aérosol au moyen du compteur électrique est limitée par deux phénomènes essentiels déjà signalés ci-dessus (paragraphe 1-3) : d'une part la faible probabilité de charge des particules ultra-fines de diamètre  $d$  inférieur à  $6.10^{-7}$  cm, et d'autre part la fixation de charges multiples sur les particules plus grosses. En tenant compte des lois de charge, il est possible d'introduire une correction numérique pour atténuer, au moins partiellement, les erreurs dues à la non uniformité des charges des différentes particules constituant l'aérosol (60).

### 3.1.3. Batteries de diffusion.

Ici, la principale difficulté est la résolution correcte de l'équation de TWOMEY (103). Les traitements numériques nécessaires coûtent assez cher et on peut difficilement se permettre une étude statistique importante avec ce moyen. D'autre part, le volume des batteries utilisées est supérieur à 10 litres, d'où la nécessité de disposer de 6 à 10 minutes pour obtenir les données nécessaires à l'établissement d'une granulométrie.

FigIII-21 :VARIATION de la GRANULOMETRIE avec le TEMPS





### 3.2. Choix des techniques d'étude et amélioration de la méthode.

#### 3.2.1. Choix des techniques.

Au cours des études ultérieures, nous utiliserons le compteur électrique et les batteries de diffusion.

L'analyseur électrique, malgré les réserves que nous avons formulées ci-dessus, a l'avantage d'être maniable et de donner directement, sans traitement numérique spécial, une granulométrie de l'aérosol étudié.

#### 3.2.2. Amélioration de la méthode de calcul.

Les résultats du traitement des données des batteries de diffusion ont montré que la proportion des fines particules était toujours plus faible que celle des grosses. Nous avons vu d'autre part que, dans le cas des distributions polymodales, il existait toujours une discontinuité au passage d'un mode à l'autre. D'autre part, la qualité du traitement peut dépendre du choix du diamètre maximum  $d_1$  des particules qu'on peut s'attendre à trouver dans l'aérosol (tableau III-5). La probabilité totale  $F$  de présence des particules dans les différentes classes est souvent inférieure à 1 et peut diminuer quand  $d_1$  augmente (tableau III-5). Enfin, on observe parfois, à la fin du spectre, quelques fluctuations de la réparti-

TABLEAU III-5 : INFLUENCE DU DIAMETRE MAXIMUM

a) diamètre maximum = 0,36  $\mu\text{m}$ 

Débit (l/min)	$(n/n_0)_{\text{exp}}$	$(n/n_0)_{\text{th}}$	écart en %	F
0.59	0.0143	0.0136	-4.95	1
2.33	0.1525	0.1587	4.08	
3.33	0.2210	0.2258	2.19	
4.10	0.2665	0.2681	0.61	
5.42	0.3160	0.3268	3.41	
7.79	0.3950	0.4064	2.89	
10.19	0.4630	0.4654	0.52	
12.66	0.5225	0.5129	-1.83	

b) diamètre maximum = 0.39  $\mu\text{m}$ 

Débit (l/min)	$(n/n_0)_{\text{exp}}$	$(n/n_0)_{\text{th}}$	écart en %	F
0.59	0.0143	0.0136	-5.05	0.858
2.33	0.1525	0.1560	2.26	
3.33	0.2210	0.2241	1.38	
4.10	0.2665	0.2675	0.38	
5.42	0.3160	0.3282	3.87	
7.79	0.3950	0.4074	3.13	
10.19	0.4630	0.4637	0.16	
12.66	0.5225	0.5067	-3.02	

tion des fines particules (65).

Nous avons donc cherché à améliorer la méthode de calcul.

a) Précision.

Les coefficients de diffusion sont déterminés à partir des équations de GORMELEY et KENNEDY (42) par le même procédé itératif que ci-dessus (paragraphe 2-3) et en utilisant les coefficients de TWOMEY (103). On supprime ainsi les oscillations dans le domaine des fines particules dont on augmente en même temps le pourcentage dans la distribution (tableau III-6 et Fig. III-22). Mais on constate que :

- la discontinuité subsiste au passage d'un mode à l'autre,
- la somme des probabilités peut être inférieure à 1,
- le pourcentage des fines particules reste faible.

D'où la nécessité de chercher d'autres méthodes de calcul.

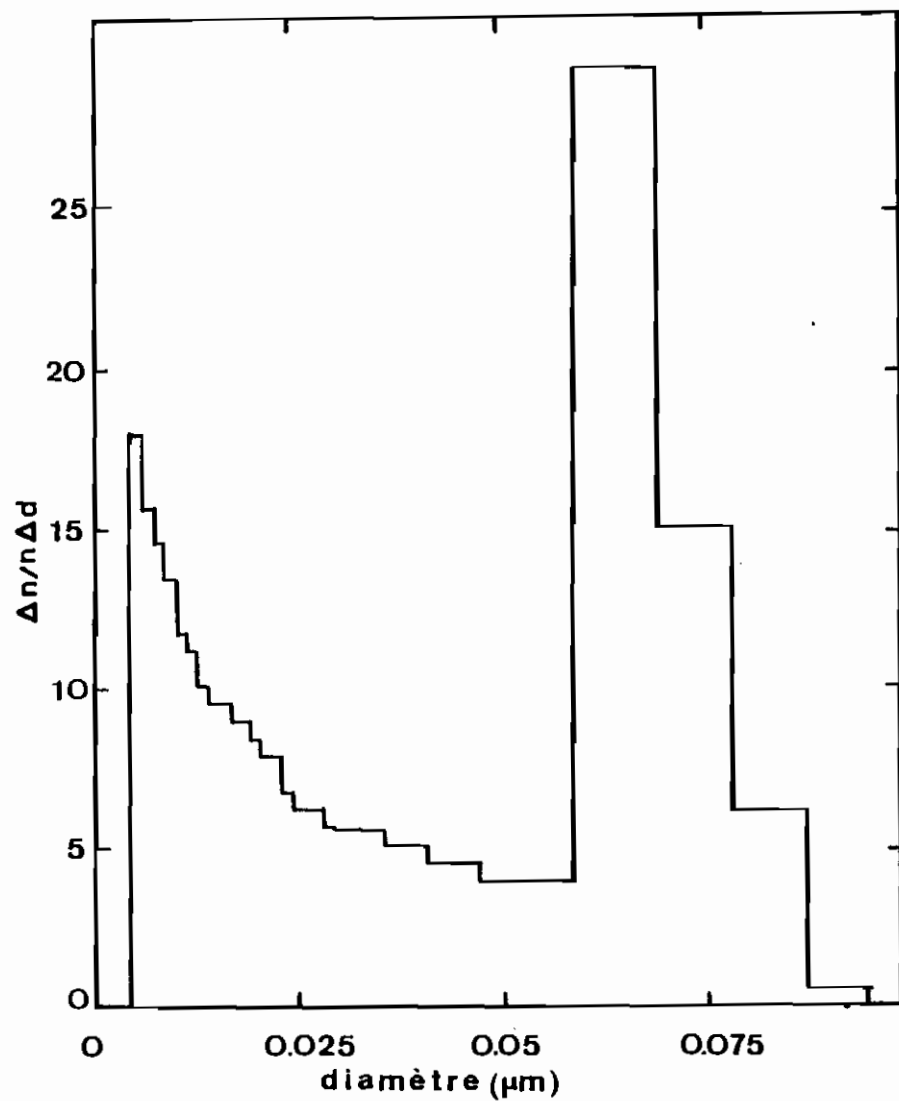
b) Ridge Régression.

soit  $\underline{e}$  un vecteur erreur. L'équation II-31 peut se mettre sous la forme :

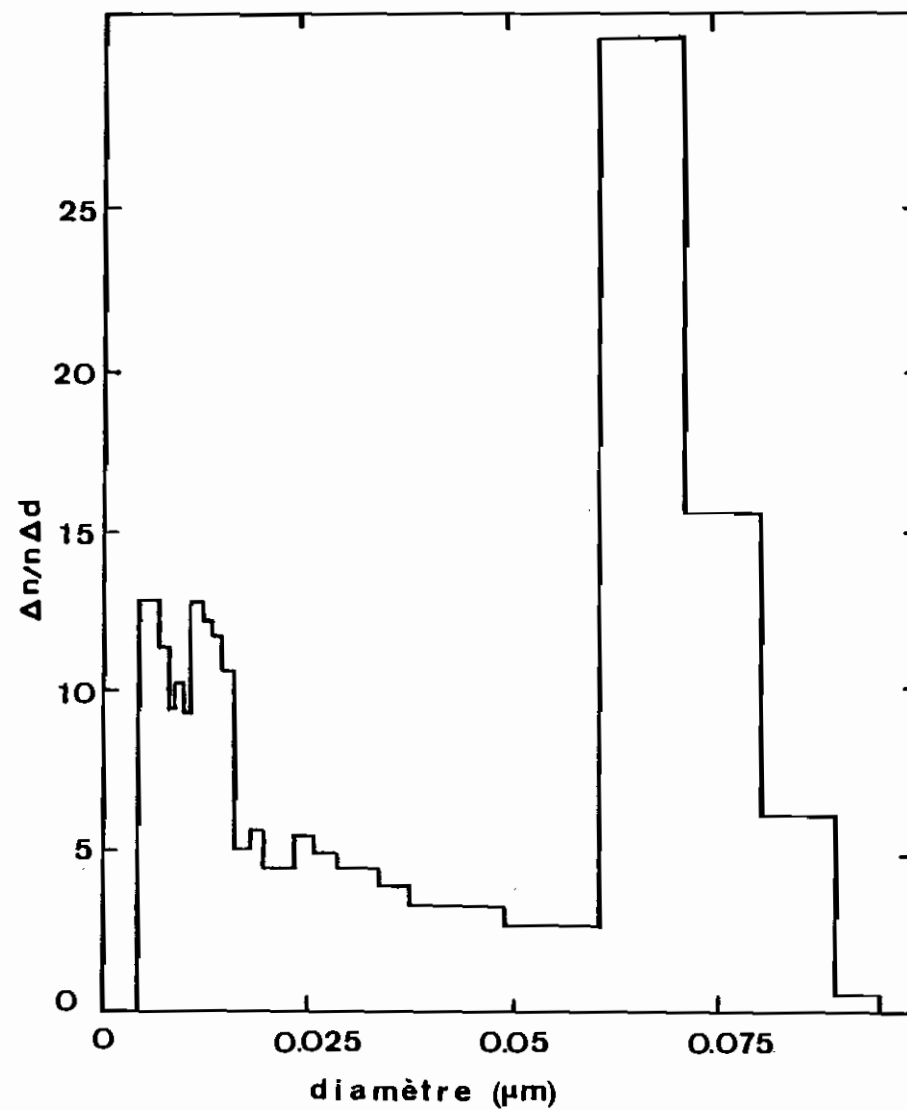
$$\frac{\underline{n}}{n_0} = \underline{y} = X \underline{f} + \underline{e} \quad (\text{III-13})$$

Tableau III-6 : Précision d'intégration.

Débit en l/min		2	6	12	24	52	200	$\Sigma F$
$\left(\frac{n}{n_0}\right)$	expérimental	0.02	0.165	0.295	0.405	0.515	0.665	
Coefficient de Gormley (2 termes)	$\left(\frac{n}{n_0}\right)_{th}$	0.019	0.1595	0.2924	0.4125	0.521	0.665	0.86
	Ecart	- 4.99	- 3.32	- 0.87	1.85	1.15	- 0.03	
Coefficient de Twoney (8 termes)	$(n/n_0)_{th}$	0.019	0.1569	0.2881	0.4084	0.5188	0.665	0.85
	Ecart	- 4.96	- 4.93	- 2.33	0.85	0.74	- 0.05	



b) Twomey



a) Gormley

Fig. III-22 : OSCILLATION DE L'AJUSTEMENT

On peut alors la résoudre par la méthode de régression (15-b). Comme l'a montré MAIGNE (65), la régression linéaire classique donne des coefficients  $f$  positifs ou négatifs, ce qui est physiquement aberrant. La régression sous contrainte de positivité donne certains coefficients supérieurs à l'unité.

Mais la matrice  $X$  de l'équation III-13, définie au chapitre II, est une matrice carrée triangulaire basse. On détermine donc  $N$  coefficients  $f$  à partir de  $N$  équations. Or l'erreur commise sur la détermination du vecteur  $\underline{f}$  augmente quand le nombre d'équations diminue. Pour minimiser ces erreurs, nous avons construit un système sur-abondant d'équations en subdivisant chaque intervalle en  $S$  sous-intervalles où  $f$  est supposé constant :

$$f_i^1 = f_i^2 = \dots = f_i^S$$

d'où un système de  $SN$  équations pour déterminer les  $N$  coefficients.

Avec ce nouveau système d'équations, on devrait s'attendre à une meilleure solution de l'équation III-13 donnant les valeurs de  $f_i$  avec plus de précision. Mais, la régression linéaire classique et la régression sous contrainte de positivité ayant montré les mêmes anomalies signalées ci-dessus nous avons tenté de résoudre notre problème par le "Ridge regression" amélioré par CAZES (17).

On pose dans ce cas :

$$X N \underline{y} = (X N X' + k M) \underline{f}$$

où  $X'$  est la transposée de la matrice  $X$ .

Les métriques  $N$  et  $M$  sont choisies respectivement dans l'espace des "caractères"  $f$  et celui des "individus"  $y$ .

L'équation ci-dessus donne le vecteur  $\underline{f}$  :

$$\underline{f} = (X N X' + k M)^{-1} X N \underline{y}$$

on détermine le coefficient  $k$  qui minimise l'écart :

$$\epsilon = \left\| \underline{y} - \underline{y}^+ \right\|_N^2 \quad (\text{III-14})$$

où  $\underline{y}^+$  est la solution trouvée et  $N = \Gamma^{-1}$ , avec

$\Gamma = \text{Var} (e) =$  matrice de variance des erreurs.

Les exemples traités donnent des valeurs de  $f$  toutes inférieures à un, mais avec  $\sum f > 1$  ou  $\sum f < 0,7$ , ce qui n'est pas satisfaisant.

En résumé, la Ridge régression, comme la régression sous contraintes et la régression linéaire ne peuvent permettre la résolution de notre problème. D'autre part, pour améliorer la méthode de MAIGNE, nous n'avons pu supprimer que les oscillations en fin de spectre. Les autres anomalies demeurent :

- discontinuité au passage d'un mode à l'autre

- somme des probabilités souvent inférieure à 1
- dépendance du diamètre maximum
- faible pourcentage des fines particules.

Il est donc nécessaire de trouver une autre méthode d'intégration de l'équation de TWOMEY.



## CHAPITRE IV

### NOUVELLE METHODE DE DETERMINATION DE LA GRANULOMETRIE D'UN AEROSOL AU MOYEN DES BATTERIES DE DIFFUSION

Nous décrivons d'abord très succinctement cette méthode mise au point avec ARNAUD (1) avant d'en étudier la stabilité.

#### 1. PRINCIPE.

$r_1$  et  $r_m$  étant respectivement les rayons des plus fines et des plus grosses particules, considérons l'équation :

$$y = \frac{n}{n_0} = \frac{1}{n_0} \int_{r_1}^{r_m} f'(r) \rho(r, Q_i) dr$$

soit en posant :

$$\frac{1}{n_0} f'(r) = f(r)$$

$$y = \int_{r_1}^{r_m} f(r) \rho(r, Q_i) dr \quad (IV-1)$$

Connaissant l'expression de  $\rho(r, Q_i)$  et la forme de la fonction  $f(r)$ , on cherche les valeurs  $f$  qui minimisent l'écart défini par l'équation III-14 où  $y$  est la donnée expérimentale et  $y^+$  la valeur calculée correspondante.

## 2. METHODE.

### 2.1. Intégration par la méthode de SIMPSON

Le domaine d'intégration  $(r_1, r_m)$  étant divisé en  $k$  intervalles on choisit pour  $f$  une forme gaussio-logarithmique et on intègre par la méthode de SIMPSON (Fig. IV-1). Celle-ci consiste à poser:

$$F = \int_{r_1}^{r_m} f(r) dr = 2h \left\{ \frac{1}{2} F_0 + F_1 + F_2 + \dots + F_{k-1} + F_k \right\} - \frac{h^2}{3} \left\{ f'(r_m) - f'(r_1) \right\} + e \quad (\text{IV-2})$$

où  $h$  est l'intervalle d'interpolation,  $k$  le nombre d'intervalles,  $f'$  la dérivée de  $f$  et  $e$  l'erreur commise dans cette approximation.

Si  $k$  est le nombre d'intervalles et  $f_s^4(r)$  la limite supérieure de la dérivée quatrième de  $f(r)$  on a :

$$e < \frac{kh^5}{720} f_s^4(r)$$

$k$  et  $h$  sont choisis pour que l'écart  $I - F$  soit minimum. On détermine  $F$  en intégrant dans tout le domaine d'intégration pour différentes valeurs de  $k$  et  $h$ . Les résultats obtenus sont portés sur la figure IV-2 qui montre que le meilleur choix est celui pour lequel  $k = 20$  et  $h = 0,55$ . Ici,  $h$  représente en fait

le pas réduit ( $h/\sigma$ ) où  $\sigma$  est l'écart type. La méthode est testée avec la fonction  $f(r)$  mais elle est appliquée au produit de  $f(r)$  par la fonction décroissante  $\rho(r, Q)$ .

Dans la pratique on admet, ce qui est généralement le cas dans l'atmosphère, que la granulométrie peut être représentée par une somme de distributions log-normales.

## 2.2. Minimisation par la méthode des gradients conjugués.

Dans ce paragraphe,  $e, f, g, p, y$  sont des vecteurs et  $\alpha, \lambda$  des scalaires. Revenons à l'équation II-31 :

$$\frac{n}{n_0} = X \cdot f = y \quad (\text{IV-3})$$

La validité de la solution de cette équation dépend de l'erreur  $e$  commise sur la détermination de  $y$ .

$$e = y - Xf$$

Le problème qui se pose est donc la minimisation de ce résidu  $e$  (de composantes  $e_i$ ).

Soit  $g$  une solution de l'équation ci-dessus. Dans tout ce qui suit, nous supposerons que la matrice  $X$  d'ordre  $N$  est symétrique définie positive. Si on dispose d'une suite de  $N$  vecteurs ( $p_i/i = 0, \dots, N-1$ )  $X$  conjugués, c'est-à-dire tels

que :

$$\begin{aligned} (X p_i, p_j) &= 0 \quad \text{pour } i \neq j \\ (X p_i, p_j) &> 0 \quad \text{pour } i = j \quad (\text{puisque } X \text{ est définie} \\ &\quad \text{positive}) \end{aligned}$$

où  $(X p_i, p_j)$  est le produit scalaire de  $X p_i$  et  $p_j$  ;

les  $p_i$  étant linéairement indépendants et formant de ce fait une base de l'espace à  $N$  dimensions, le vecteur solution  $g$  peut se mettre sous la forme :

$$g = a_0 p_0 + a_1 p_1 \dots + a_{N-1} p_{N-1}$$

avec :

$$a_i = \frac{(y, p_i)}{(X p_i, p_i)}$$

d'où :

$$g = \frac{(y, p_0)}{(X p_0, p_0)} p_0 + \frac{(y, p_1)}{(X p_1, p_1)} p_1 + \dots + \frac{(y, p_{N-1})}{(X p_{N-1}, p_{N-1})} p_{N-1}$$

(IV-4)

Il s'agit alors de déterminer les  $N$  vecteurs  $p_i$ . Dans la méthode du gradient conjugué on cherche, par le procédé d'orthogonalisation de GRAM-SCHMIDT (2), une série particulière de  $N$  vecteurs  $X$  conjugués à partir d'une série quelconque de  $N$  vecteurs linéairement indépendants. On aura la schéma :

$$\begin{aligned} f_0 &= a_0 p_0 \\ f_{i+1} &= f_i + a_i p_i \end{aligned}$$

Le processus est basé sur l'obtention du minimum de la fonction :

$$H(f) = (X(g - f), g - f) \quad (\text{IV-5})$$

sur la droite  $f = f_i + \lambda_i p_i$

où l'expression

$$\lambda_i = \frac{(e_i, p_i)}{(X p_i, p_i)}$$

pour le minimum est obtenue en faisant :

$$\frac{\partial H(f_i + \lambda_i p_i)}{\partial \lambda_i} = 0$$

$H(f)$  est le carré de la norme, au sens de la métrique  $X$ , du vecteur erreur  $(g-f)$ .

On montre que :  $\frac{\partial H}{\partial f_i} = -2 e_i$ . Le vecteur erreur  $e_i$  a donc même direction que  $\frac{\partial H}{\partial f_i}$  le gradient, mais il est de sens contraire.

La projection de ce vecteur gradient de  $H$  au point  $f_i$  sur l'espace linéaire engendré par  $p_i, p_{i+1} \dots p_{N-1}$  définit la direction du vecteur  $p_i$  dans laquelle on se déplace quand on passe du point  $f_i$  au point  $f_{i+1}$ . La surface définie par l'équation :

$$H(f) = c^{\text{te}}$$

est un ellipsoïde à  $N$  dimensions dans un espace à  $N+1$  dimensions.

Géométriquement, la méthode du gradient peut se résumer ainsi :

- On considère l'hyper-ellipsoïde  $H(f) = H(f_0)$  passant par un point arbitraire  $f_0$ . Le centre de cet ellipsoïde est la solution  $g$  cherchée. Quand on va de  $f_0$  à  $f_1$  on se déplace suivant la corde normale en  $f_0$  à la surface de l'ellipsoïde. On montre que  $f_1$  est milieu de cette corde (Fig. IV-3).

- Connaissant maintenant  $f_1$ , on considère la projection de l'hyper-ellipsoïde  $H(f) = H(f_1)$  sur l'espace à  $N-1$  dimensions.  $f_2$  est situé au milieu de la corde normale en  $f_1$  à l'ellipsoïde de dimension  $N-1$ .

- Ayant  $f_2$ , on considère la projection de l'ellipsoïde  $H(f) = H(f_2)$  sur l'espace à  $N-2$  dimensions et on recommence les mêmes opérations que ci-dessus sur l'hyper-ellipsoïde à  $N-2$  dimensions. On réduit ainsi à chaque fois d'une unité la dimension de l'espace dans lequel on cherche la solution qu'on atteindra après  $N$  itérations au plus. En effet, si  $i < j$ , le vecteur  $f_j$  est plus proche de la solution  $f$  que le vecteur  $f_i$ ; ce qu'on peut traduire par:

$$|g - f_j| < |g - f_i|$$

Chaque itération nous rapproche donc de la solution.

Nous avons jusque-là supposé que  $X$  était symétrique définie positive. Dans le cas général d'une matrice  $X$  quelconque, la méthode peut encore s'appliquer, Il suffit pour cela, à partir de l'équation IV-3, de poser :

$$(X'X) f = X'y \quad (IV-6)$$

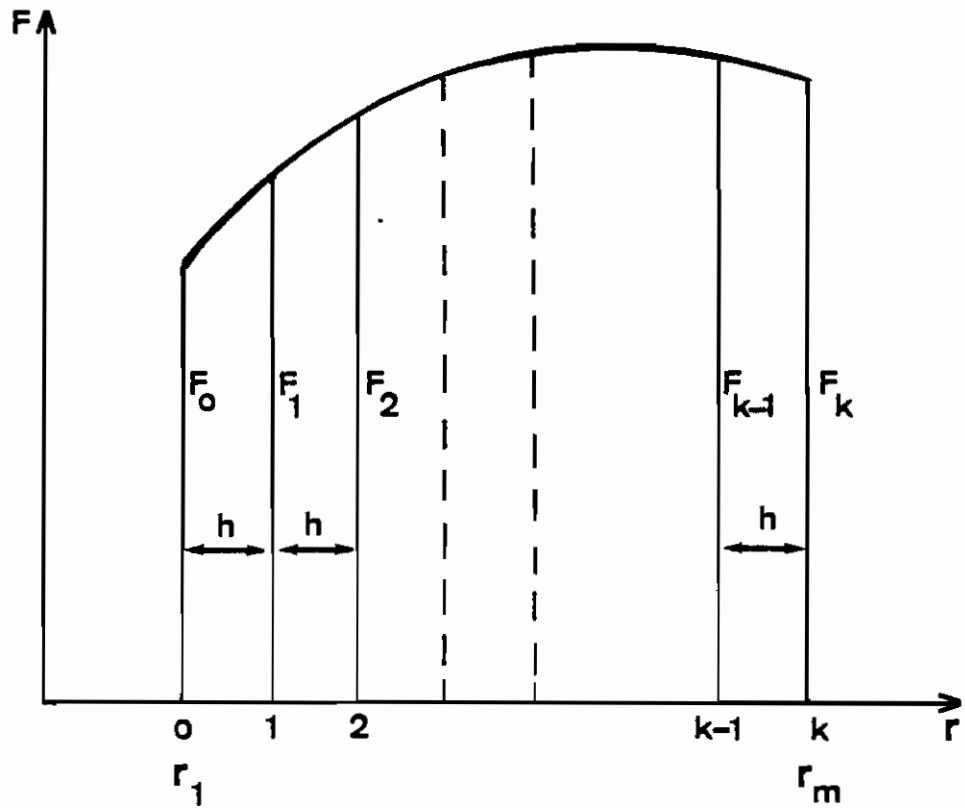


Fig. IV - 1 : INTEGRATION PAR LA METHODE DE SIMPSON

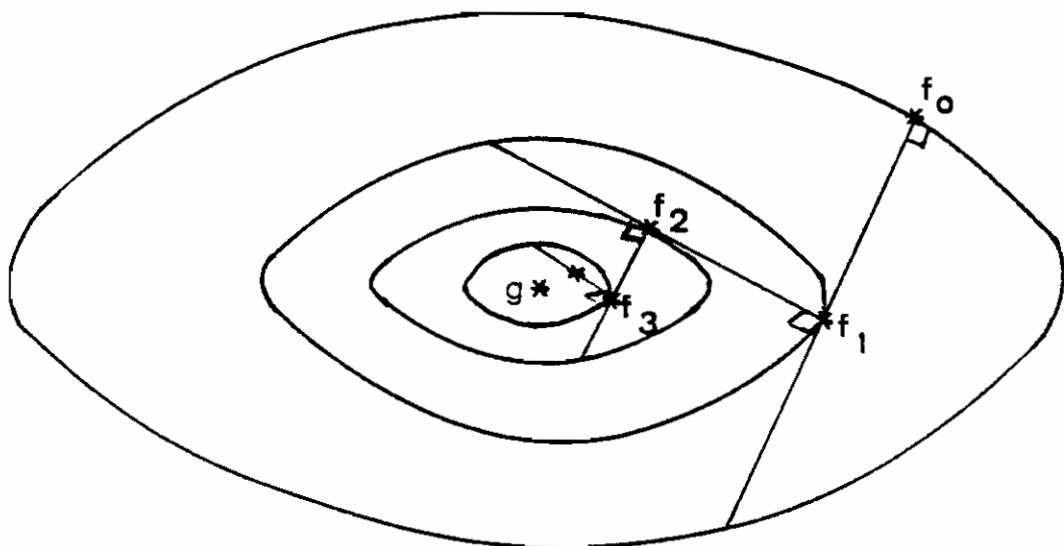


Fig. IV - 3 : MINIMISATION PAR LA METHODE DES GRADIENTS CONJUGUES

et d'appliquer la méthode à ce système. Ici,  $X'$  est la transposée de la matrice  $X$ .

### 2.3. Pratique de l'intégration.

Pratiquement, on suppose que la granulométrie peut être représentée par une somme de  $N$  lois log-normales dépendant au total de  $2N+1$  paramètres. Dans le cas de deux lois log-normales de rayons moyens  $r_1$  et  $r_2$ , d'écart type  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$ , et dont les proportions sont respectivement  $A_1$  et  $A_2$ , avec :

$$A_1 = 1 - A_2$$

Les valeurs théoriques  $\left(\frac{n}{n_0}\right)$  de  $n/n_0$  peuvent se mettre sous la forme :

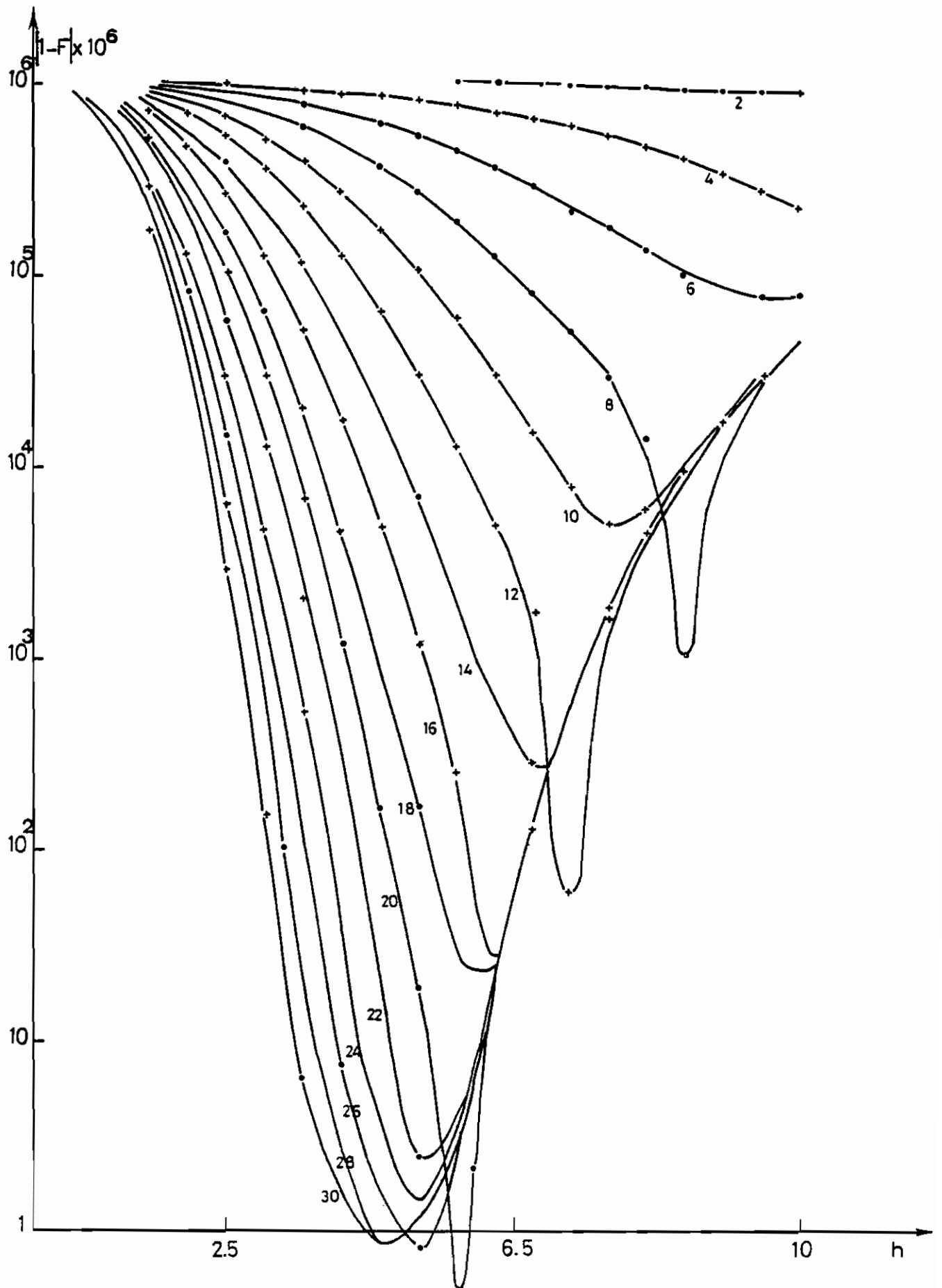
$$\left(\frac{n}{n_0}\right)_{th} = \frac{1}{2} \int_0^{\infty} \frac{1}{r} \left[ \frac{1-A_2}{\sigma_1} \exp\left(-\frac{(L_n r - L_n r_1)^2}{2 \sigma_1^2}\right) + \frac{A_2}{\sigma_2} \exp\left(-\frac{(L_n r - L_n r_2)^2}{2 \sigma_2^2}\right) \right] \rho(r, Q) dr \quad (IV-7)$$

Le problème revient donc à déterminer les cinq coefficients  $r_1$ ,  $r_2$ ,  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $A_2$  tels que l'écart quadratique

$$\varepsilon = \left( \left(\frac{n}{n_0}\right)_{exp} - \left(\frac{n}{n_0}\right)_{th} \right)^2$$

soit minimum. Le programme de traitement numérique est indiqué en annexe 3.





FigIV-2 CHOIX de l'INTERVALLE d'INTERPOLATION

TABLEAU IV-1

Données expérimentales et approximation

Débit (l/min)	( N/NO ) <sub>exp</sub>	( N/NO ) <sub>th</sub>	ECART EN %
10.00	0.08000	0.07868	1.85403
20.00	0.12000	0.12276	- 2.29701
30.00	0.15000	0.15048	- 0.32246
40.00	0.17000	0.17013	- 0.07661
50.00	0.18700	0.18527	0.92706
60.00	0.20000	0.19766	1.16774
80.00	0.22000	0.21765	1.06906
100.00	0.23500	0.23382	0.50413
140.00	0.25600	0.25956	- 1.39065
200.00	0.28500	0.28823	- 1.13232

Le traitement des données du tableau IV-1 donne les résultats du tableau IV-2, les paramètres correspondants étant :

$$r_1 = 3.00 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$$

$$r_2 = 6.77 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$$

$$\sigma_1 = 1.14$$

$$\sigma_2 = 1.00$$

$$A_2 = 0.11$$

Dans la deuxième colonne de ce tableau sont portées les valeurs de la fonction de distribution. La quatrième colonne contient les valeurs de la fonction de répartition qui tend bien vers 1 quand le diamètre augmente. On trouve enfin dans la cinquième colonne, pour chaque diamètre  $d_i$ , la concentration  $n$  des particules de diamètre inférieur ou égal à  $d_i$ .  $n$  tend vers  $n_0$  quand le diamètre tend vers  $d_{\text{Max}}$ .

### 3. PRECISION ET STABILITE.

#### 3.1. Précision.

La qualité de la distribution obtenue dépend de l'erreur commise sur la détermination du minimum de la fonction  $H$  indiquée ci-dessus (équation IV-5). Des tests effectués sur les résultats d'une mesure montrent que :

TABLEAU IV-2 : Résultats de l'intégration

Diamètres des particules en $\mu\text{m}$	$\frac{DF}{DLOGR}$	DN/DLOGR	F Fonction de répartition	N concentration en particules $\text{cm}^{-3}$	Paramètres de la distribution
0.002	0.195	7947.32	0.14826	6034.1	$r_1 = 0.003 \mu\text{m}$ $\sigma_1 = 1.14$ $A_1 = 0.89$
0.004	0.292	11891.25	0.32018	13031.1	
0.006	0.312	12678.61	0.44381	18063.7	
0.008	0.302	12296.81	0.53254	21674.3	
0.010	0.283	11506.92	0.59707	24337.3	
0.020	0.165	7521.56	0.76177	31003.9	
0.040	0.099	4019.21	0.85739	34895.6	
0.060	0.072	2943.11	0.89148	36283.4	
0.080	0.062	2536.68	0.91072	37066.2	
0.100	0.057	2337.71	0.92405	37608.8	
0.200	0.044	1804.13	0.95954	39063.3	$r_2 = 0.068 \mu\text{m}$ $\sigma_2 = 1$ $A_2 = 0.11$
0.400	0.026	1037.99	0.98394	40046.4	
0.600	0.015	615.52	0.99210	40378.5	
0.800	0.009	386.13	0.99560	40521.0	

- tant que  $\epsilon > 10^{-5}$ , la distribution est unimodale et la proportion des particules ultrafines est faible;

- pour  $\epsilon = 10^{-6}$  apparaît une bimodalité dont les maxima sont situés à  $2.5 \cdot 10^{-7}$  cm et  $2.6 \cdot 10^{-6}$  cm ; cette bimodalité subsiste pour  $\epsilon = 10^{-7}$  (Fig. IV-4). Il faut donc prendre une précision suffisamment grande. Mais il n'est pas utile de rechercher une précision excessive puisque, comme nous l'avons indiqué ci-dessus (paragraphe III-2-3), l'incertitude expérimentale varie entre 1 % et 5 %.

### 3.2. Stabilité de la méthode.

#### 1°) Influence du débit maximum.

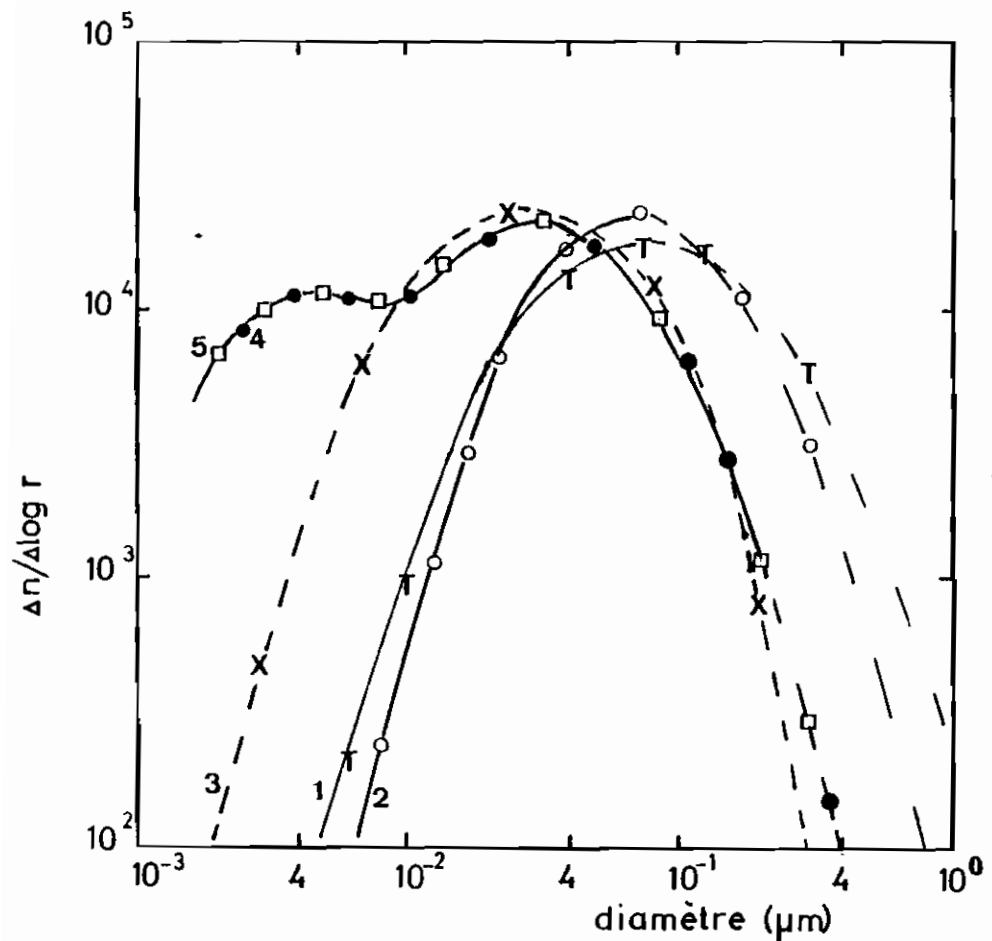
Le traitement des données obtenues avec différentes valeurs du débit maximum  $Q_M$  montre que, entre 52 l/min et 200 l/min, la position des maxima est peu dépendante de  $Q_M$ .

L'exemple de la Figure IV-5 donne respectivement, pour 52 l/min et 200 l/min, les maxima suivants (en diamètre) :

$0.6 \cdot 10^{-6}$ cm	et	$2.0 \cdot 10^{-6}$ cm
$0.6 \cdot 10^{-6}$ cm	et	$2.1 \cdot 10^{-6}$ cm

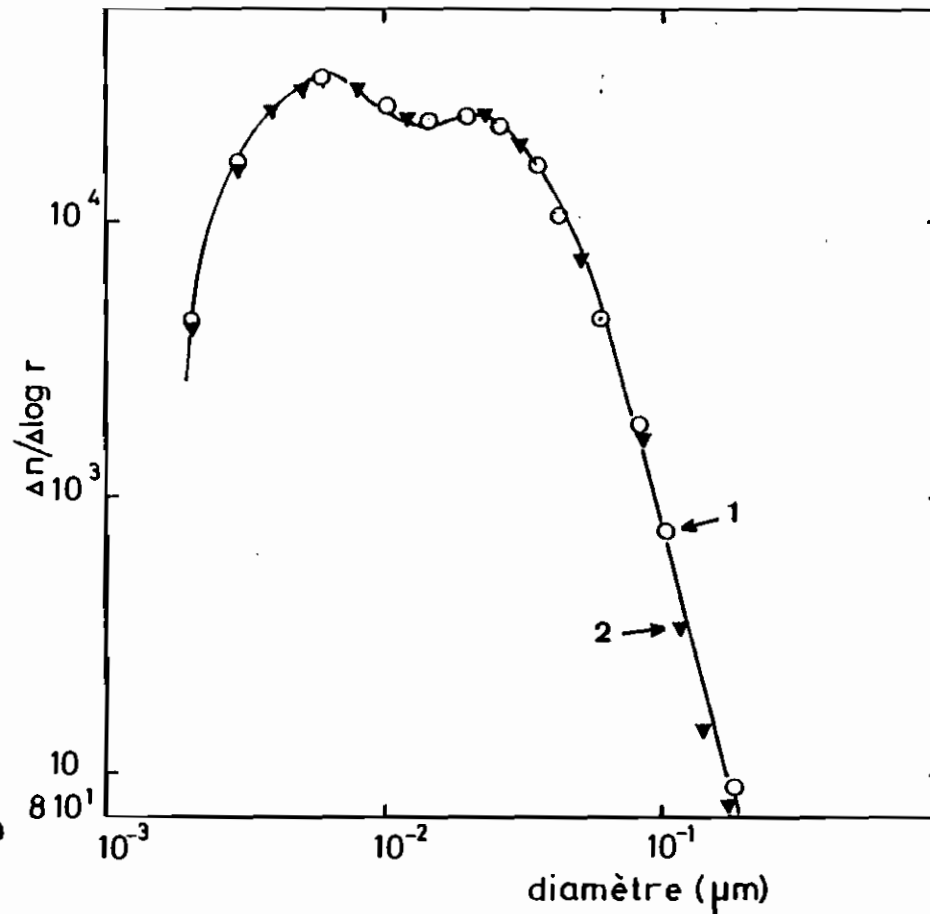
#### 2°) Influence des erreurs sur $n/n_0$ .

Considérons les deux séries de valeurs expérimentales de  $n/n_0$  des tableaux IV-3-a et IV-3-b. Le traitement de ces



Guyancourt 31/10/75 10h55 T  $\epsilon = 10^{-3}$  ●  $\epsilon = 10^{-6}$   
 O  $\epsilon = 10^{-4}$  □  $\epsilon = 10^{-7}$   
 X  $\epsilon = 10^{-5}$   
 - - - - - extrapolations

Fig.IV-4 : PRECISION de L'APPROXIMATION



Guyancourt 2/11/75 14h50 O  $Q_{\text{max}} = 52$  l/mn  
 V  $Q_{\text{max}} = 200$  l/mn

Fig.IV-5 : VARIATIONS avec LE DEBIT MAX.

TABLEAU IV-3 : INTRODUCTION DES ERREURS SUR  $n/n_0$ .a) 1<sup>er</sup> exemple

Débit (l/min)	6	12	24	36	52	200
$n/n_0$ exp	0.0140	0.029	0.072	0.108	0.184	0.346
$n/n_0$ th.	0.0118	0.0339	0.0756	0.110	0.1475	0.3286
écarts en %	16	- 16	- 4	- 1	19	5
$\frac{n}{n_0} (\pm 5\%)$	0.0133	0.0305	0.0684	0.1134	0.1748	0.3633
$(\frac{n}{n_0} \pm 5\%)$ th	0.0127	0.0335	0.0755	0.1122	0.1537	0.3721
écarts en %	4	- 10	- 10	1	12	- 2

b) 2<sup>e</sup> exemple

$Q$ (l/min)	6	12	24	52	200
$\frac{n}{n_0}$ exp	0.07	0.13	0.217	0.32	0.476
$n/n_0$ th	0.0727	0.1319	0.2097	0.3090	0.4831
écart (%)	- 3.86	- 1.42	3.36	3.45	- 3.45
$\frac{n}{n_0}$ exp $\pm 5\%$	0.735	0.1235	0.2279	0.304	0.4904
$\frac{n}{n_0}$ th $\pm 5\%$	0.723	0.1311	0.2078	0.3095	0.5034
écart	1.04	- 6.12	8.80	- 1.81	-2.68

résultats donne respectivement les distributions des figures IV-6-a et IV-6-b.

L'introduction d'une erreur aléatoire de 5 % sur les valeurs de  $n/n_0$  conduit, après traitement numérique aux courbes 2 et 4 (Fig. IV-6). On constate que les bimodalités très peu marquées disparaissent dans les distributions ainsi obtenues. L'introduction d'erreurs peut donc occasionner un certain lissage des courbes, ce qui est normal avec les méthodes des batteries de diffusion : en effet, avec par exemple un débit de 80 l/min, une variation de 5 % du rapport  $n/n_0$  entre 0.7 et 0.8 fait passer de  $4 \cdot 10^{-6}$  cm à  $5 \cdot 10^{-6}$  cm le diamètre maximum des particules piégées dans la batterie de 200 canaux.

### 3.3. Test de la méthode avec un aérosol "connu".

La méthode d'intégration est testée avec un aérosol d'uranine dont la granulométrie a été par ailleurs déterminée (65) par microscopie électronique (Fig. IV-7 et Fig. IV-8) après prélèvement par précipitateur thermique. Dans le tableau IV-4 sont indiquées d'une part les données expérimentales obtenues sur cet aérosol au moyen d'un CNC et de batteries de diffusion (65) et d'autre part les valeurs théoriques  $(n/n_0)_{th}$  provenant de notre approximation. Tous les calculs effectués dans ce paragraphe supposent que la concentration  $n_0$  de l'aérosol est égale au nombre total de particules comptées au microscope électronique.



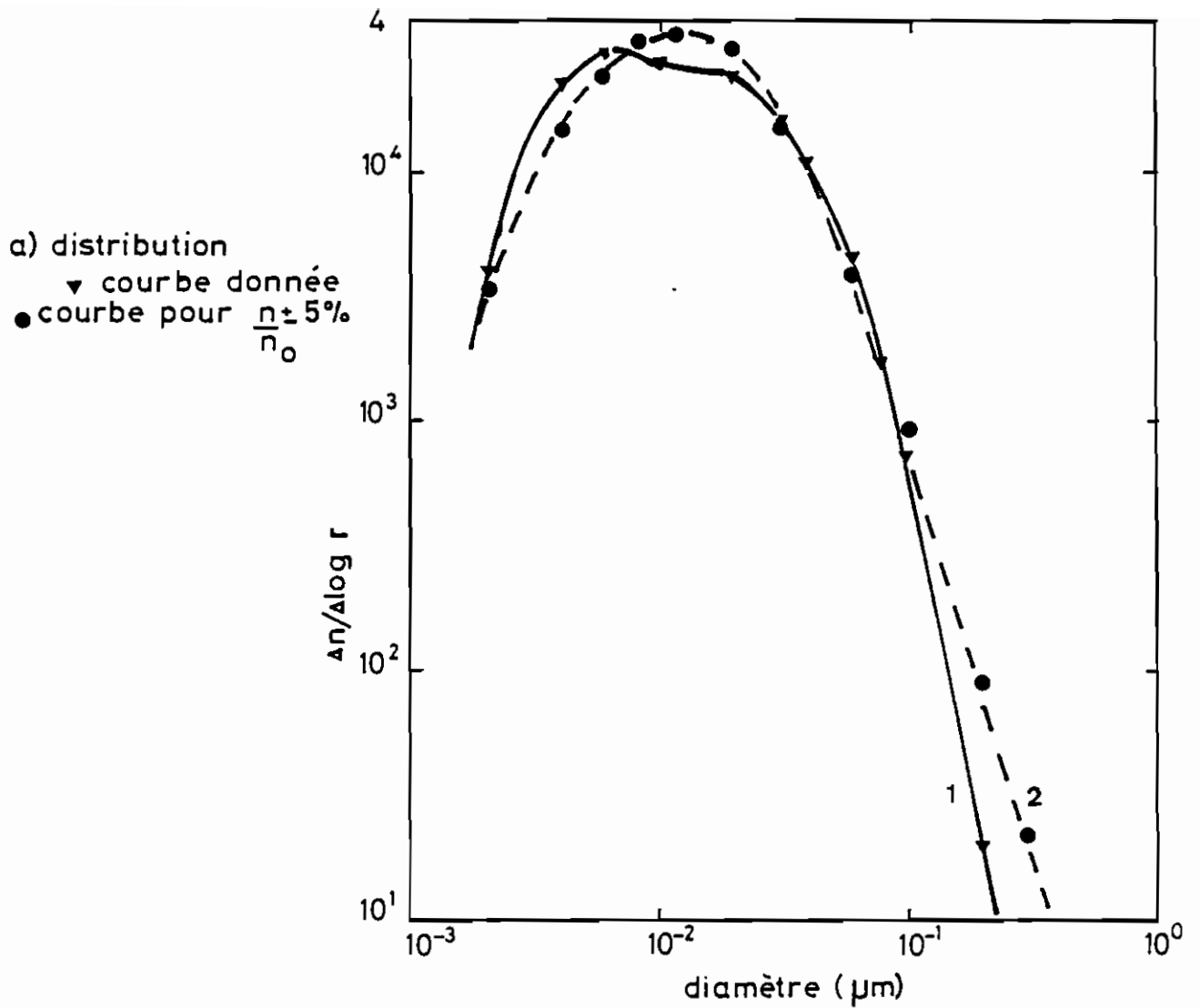


Fig IV-6 INFLUENCE des ERREURS sur  $N/n_0$

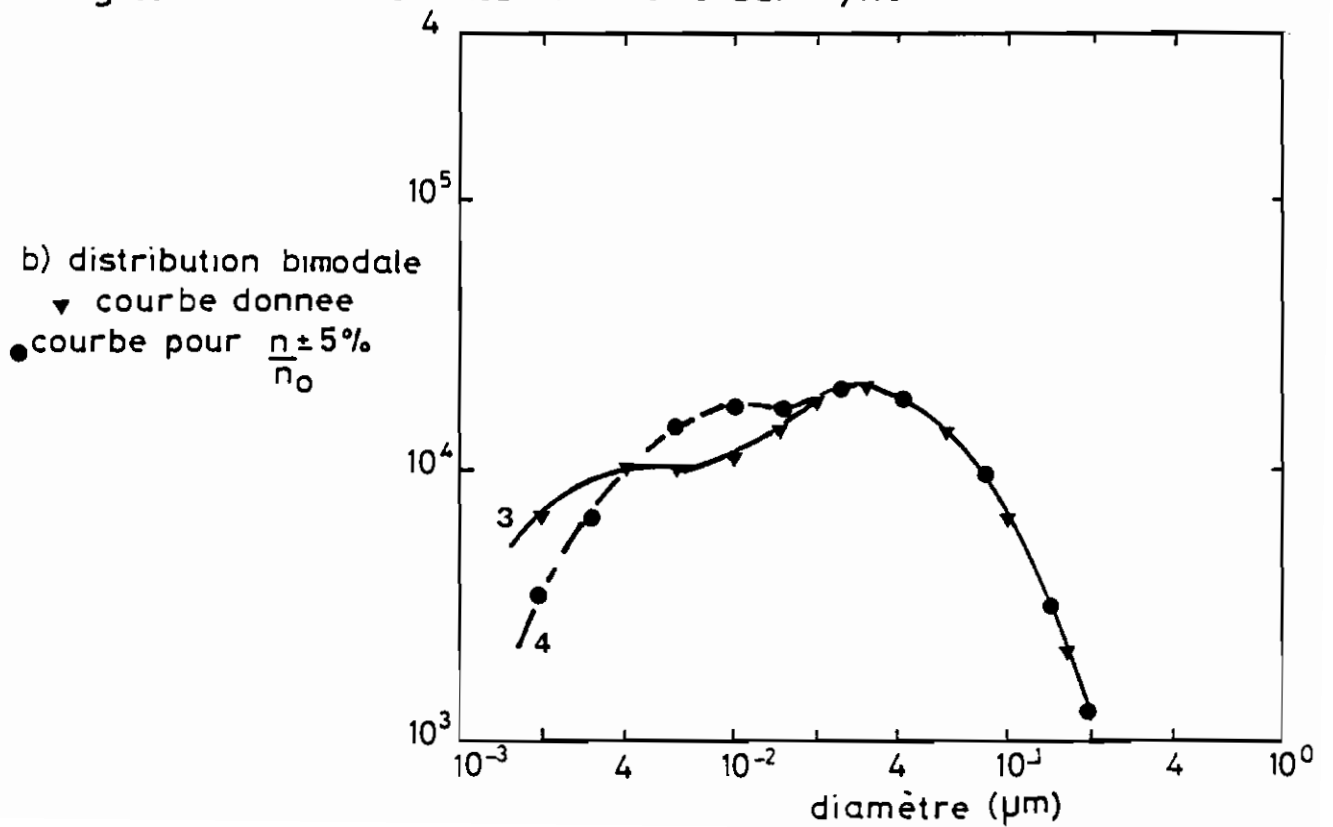


TABLEAU 4  
AEROSOL D'URANINE

Débit (l/min)	$n/n_{exp}$	$n/n_{th}$	ECART en %
0.59	0.01430	0.01445	- 1.01651
2.33	0.15250	0.14836	2.71285
3.33	0.22100	0.21613	2.20187
4.10	0.26650	0.26051	2.24769
5.42	0.31600	0.32391	- 2.50300
7.79	0.39500	0.40925	- 3.60767
10.19	0.46300	0.47146	- 1.82782
12.66	0.52250	0.51968	0.53996

On remarque, sur l'histogramme (Fig. IV-7) correspondant au traitement des données ci-dessus, que la proportion des plus fines particules (diamètre  $d < 3 \cdot 10^{-6}$  cm) et des plus grosses ( $d > 6 \cdot 10^{-6}$  cm) est légèrement plus forte que celle obtenue avec le microscope électronique. Celui-ci indique d'autre part, entre  $3 \cdot 10^{-6}$  cm et  $4 \cdot 10^{-6}$  cm, des valeurs plus élevées que celles données par notre méthode. Par contre, les fréquences cumulées que nous trouvons (Fig. IV-8) sont en parfait accord avec les résultats du microscope électronique pour  $d > 3 \cdot 10^{-6}$  cm. En traçant les variations correspondantes de  $dn/d\text{Log } d$ , on observe également (Fig. IV-9) un bon accord entre le microscope et notre méthode.

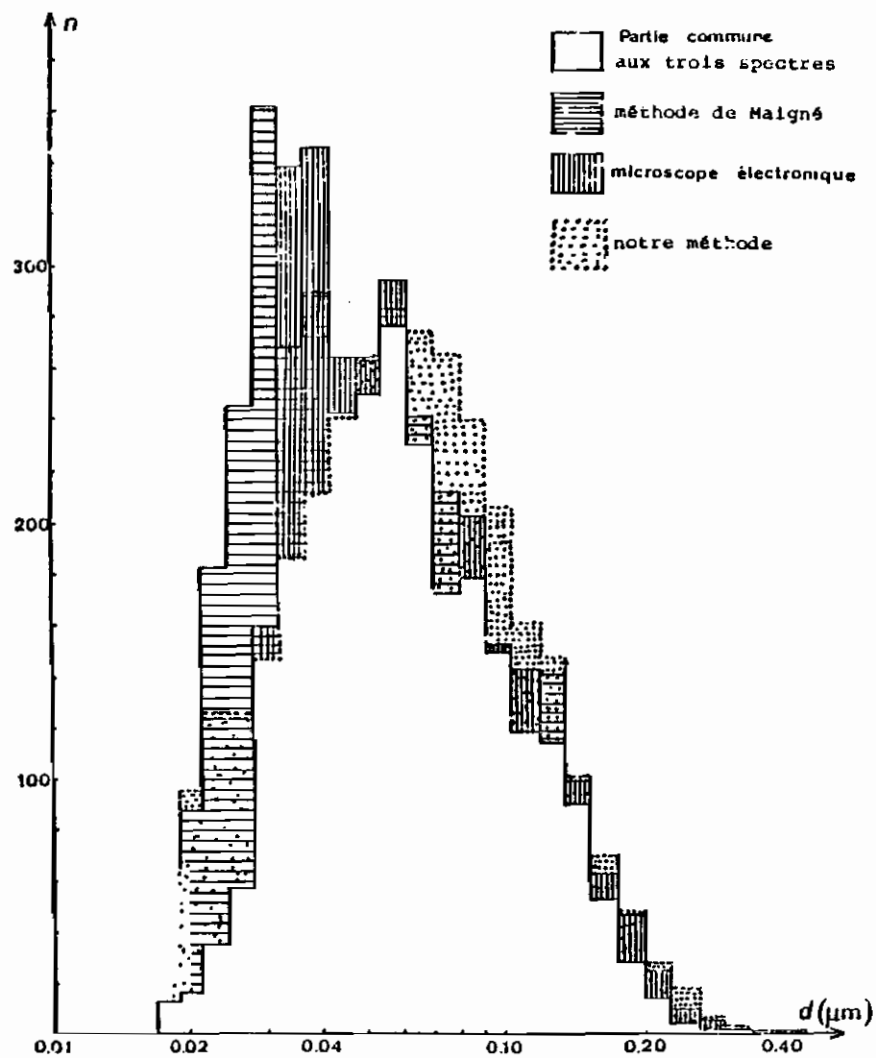


Fig. IV - 7 : TEST DE LA METHODE : spectres de l'uranine obtenus par notre méthode, celle de Maigné et le microscope électronique

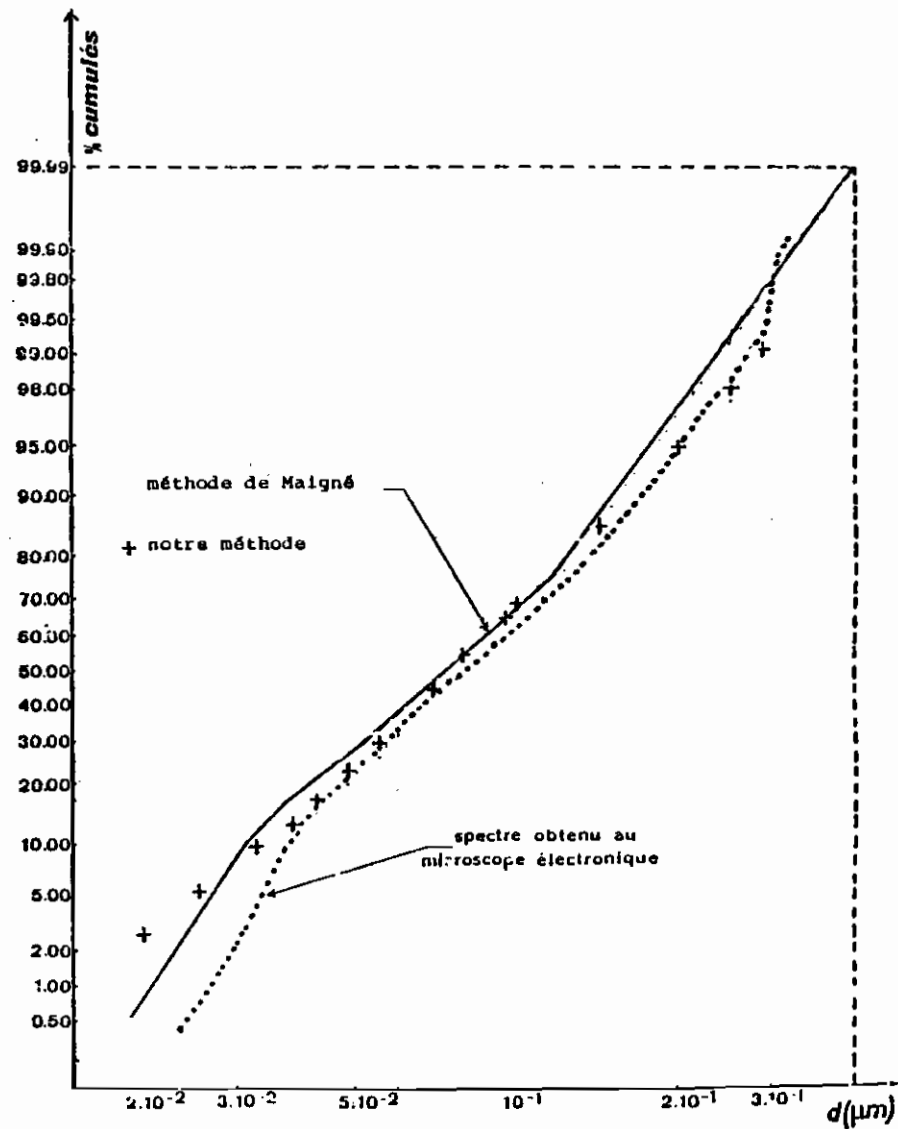
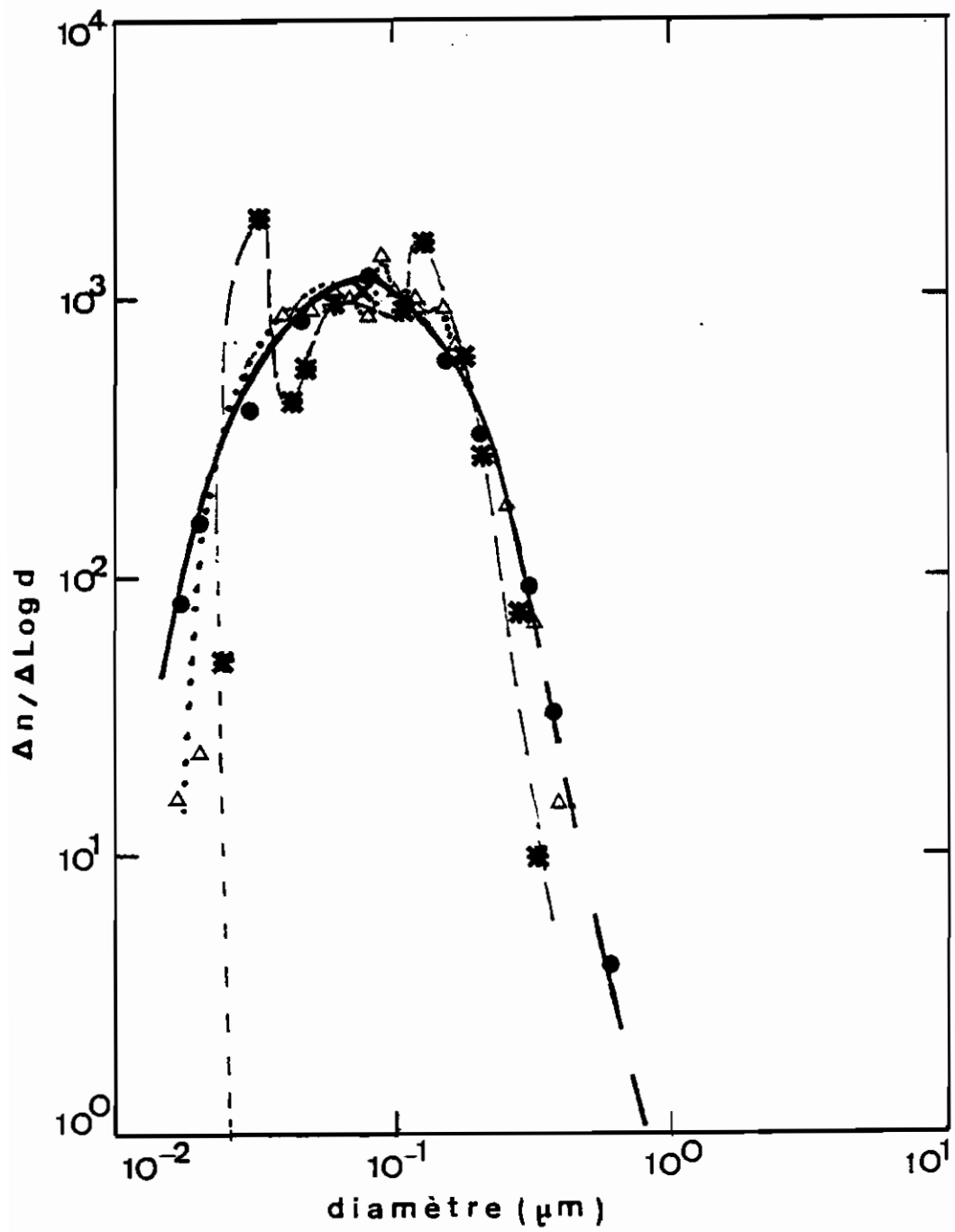


Fig. IV - 8 : TEST DE LA METHODE : fréquences cumulées



$\Delta$  Microscope electronique  
 $\bullet$  notre méthode  
 ( - - - extrapolations)  $\ast$  méthode de Maigné

Fig. IV - 9 : TEST DE LA METHODE

### 3.4. Comparaison des méthodes.

#### 1°) Simulation d'une distribution.

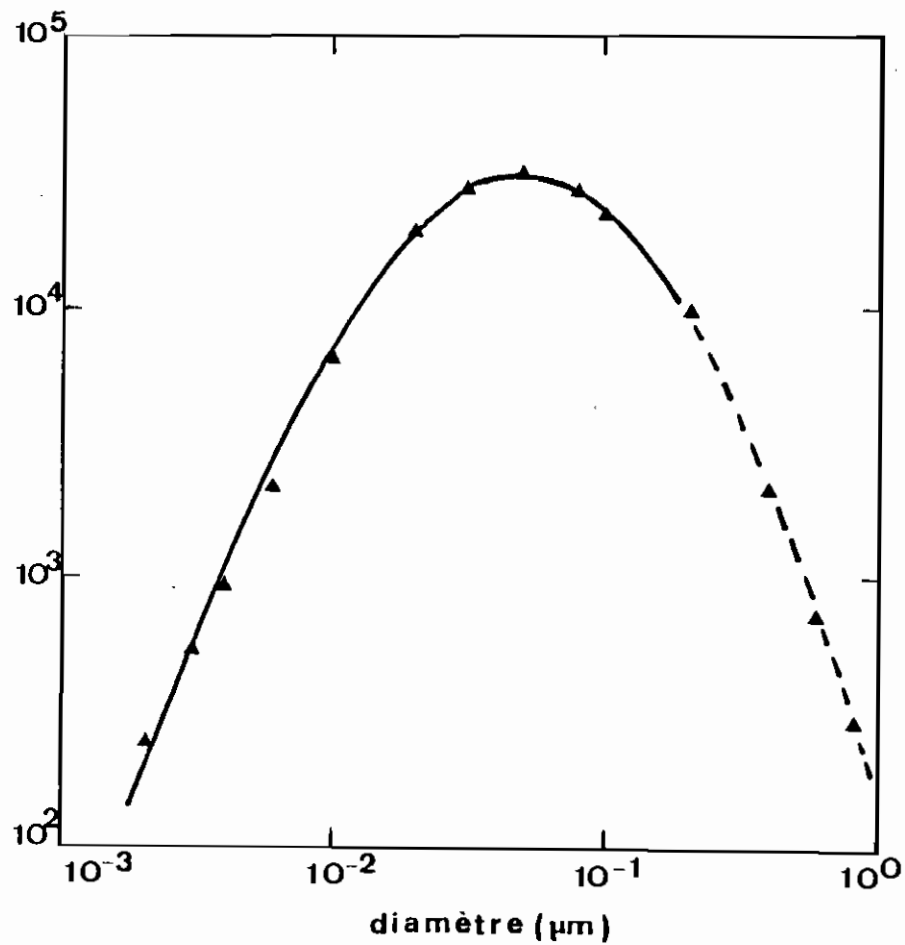
On se donne à priori une granulométrie, c'est-à-dire une fonction de distribution  $f$ , et on cherche à retrouver cette granulométrie en utilisant les méthodes d'intégration. Pour cela, on considère  $N$  débits  $Q_i$  et on détermine théoriquement  $N$  valeurs correspondantes du rapport  $n/n_0$  à partir de l'équation de TWOMEY :

$$\frac{n_i}{n_0} = \int_{r_1}^{r_m} f(r) \rho(r, Q_i) dr$$

En pratique, connaissant  $dn/d \text{Log}r$ , on en déduit  $f$ , d'où  $n_i/n_0$  en fonction de  $Q_i$ . Deux séries de valeurs de  $n/n_0$  ainsi obtenues sont indiquées dans les tableaux IV-5-a et IV-5-b ; elles correspondent aux courbes données sur les figures IV-10-a et IV-11-a. Le traitement de ces données par la nouvelle méthode de calcul montre que les granulométries sont bien restituées (Figures IV-10-b et IV-11-b).

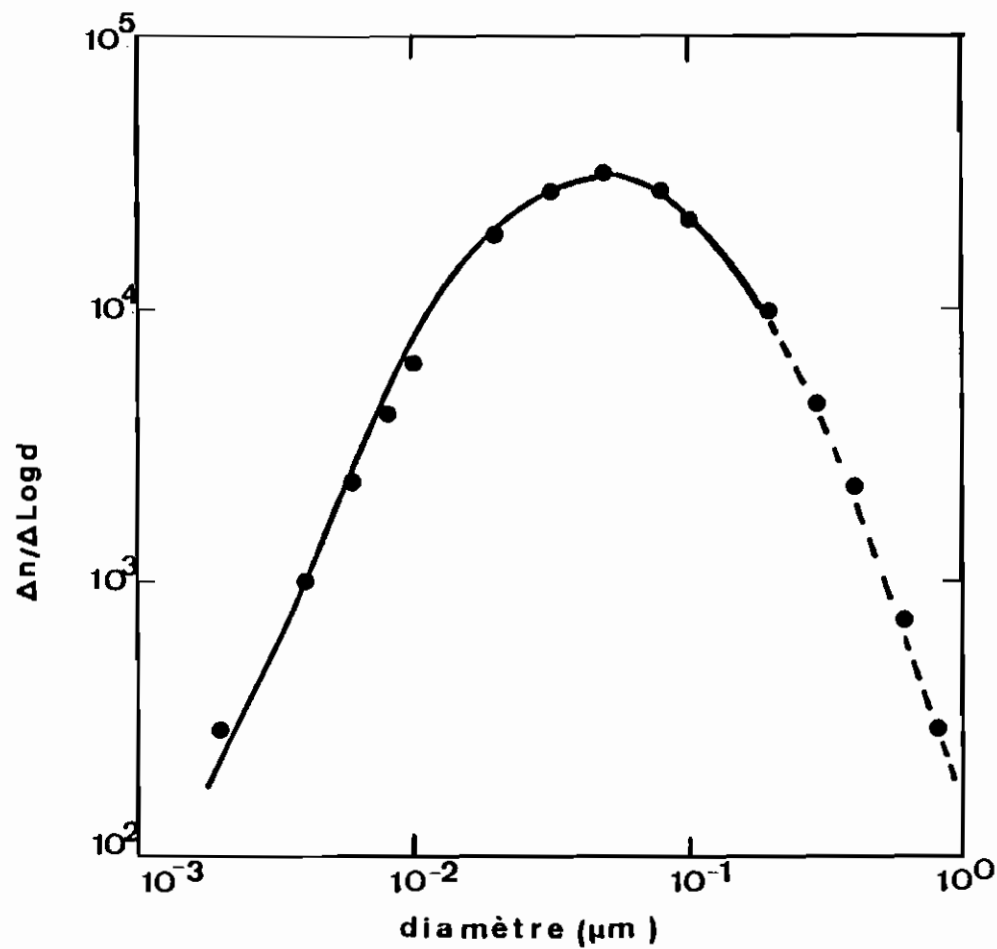
#### 2°) Résultats comparés d'une mesure.

Sur la Figure IV-12 sont portés, en échelle logarithmique, les résultats obtenus par différentes méthodes sur un même aérosol. On constate que :



a) donnée

( - - - - - extrapolations)



b) restituée

Fig. IV - 10 : SIMULATION D'UNE GRANULOMETRIE UNIMODALE

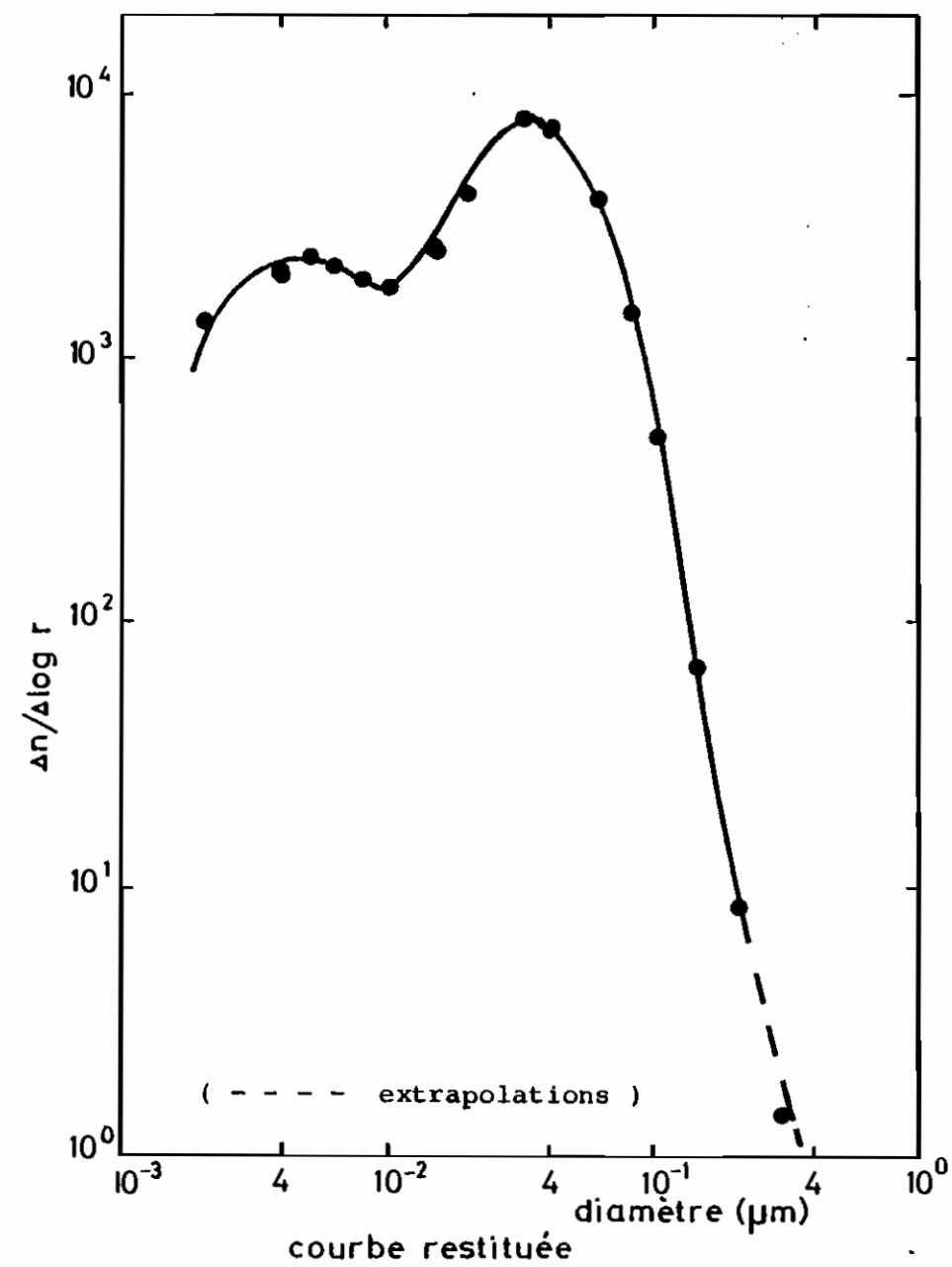
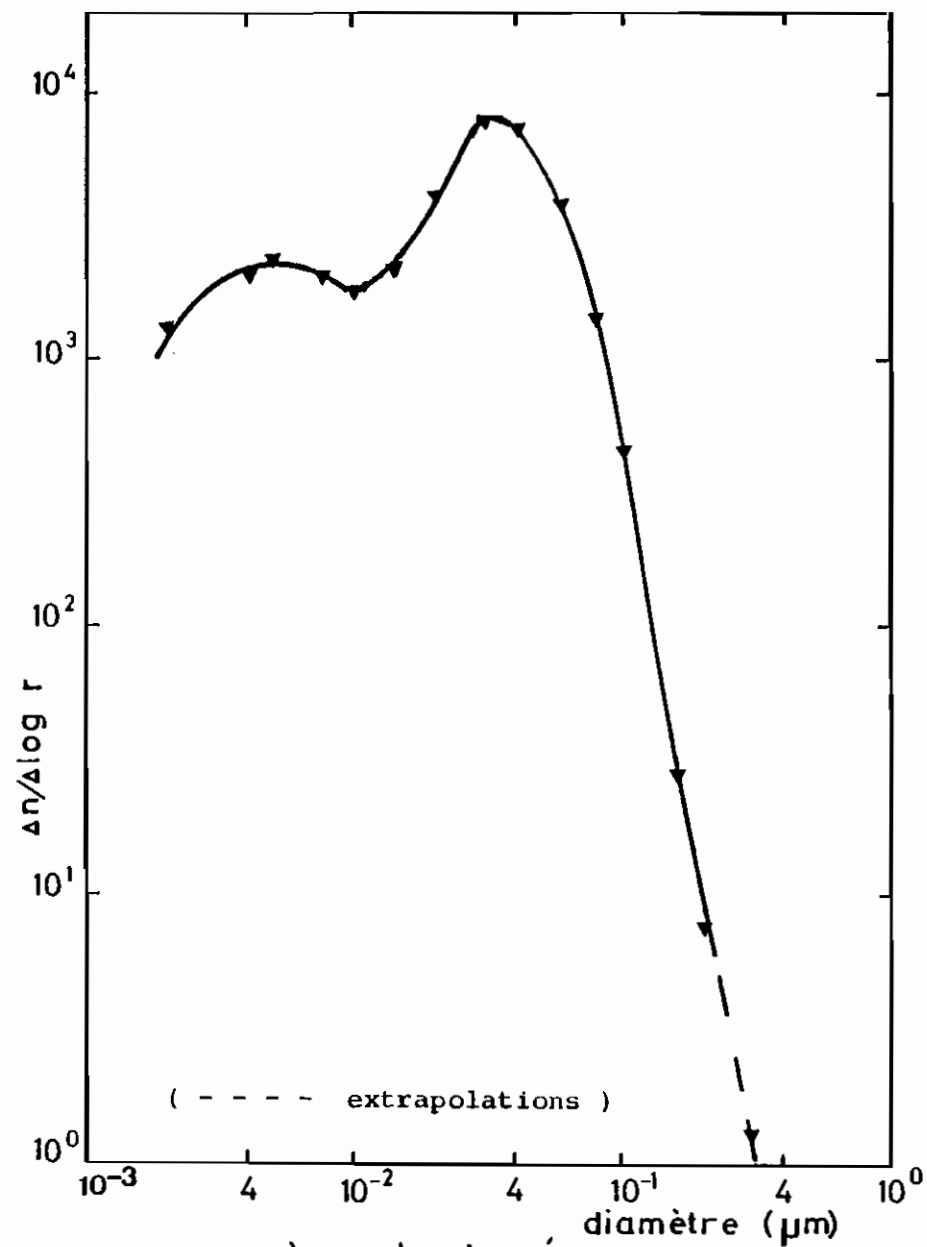


Fig IV-11 SIMULATION d'une DISTRIBUTION BIMODALE

TABLEAU IV-5 : SIMULATION D'UNE GRANULOMETRIE

a) Distribution unimodale

Q (1/min)	5.8	8.6	16	27.6	40	60	100	200
$\frac{n}{n_0}$ donné	0.2408	0.3062	0.4164	0.5145	0.5772	0.6439	0.7163	0.8022
$\frac{n}{n_0}$ restitué	0.2405	0.3065	0.4165	0.5145	0.5771	0.6437	0.7158	0.8015
écarts (%)	0.10	- 0.10	- 0.04	- 0.00	0.02	0.04	0.07	0.09

b) Distribution bimodale

Débit (1/min)	6	12	24	56	200
$n/n_0$ donné	0.03991	0.10875	0.21137	0.33802	0.51419
$n/n_0$ recalculé	0.03993	0.10870	0.21150	0.33890	0.51595
écarts en %	- 0.043	0.049	- 0.090	- 0.262	- 0.342



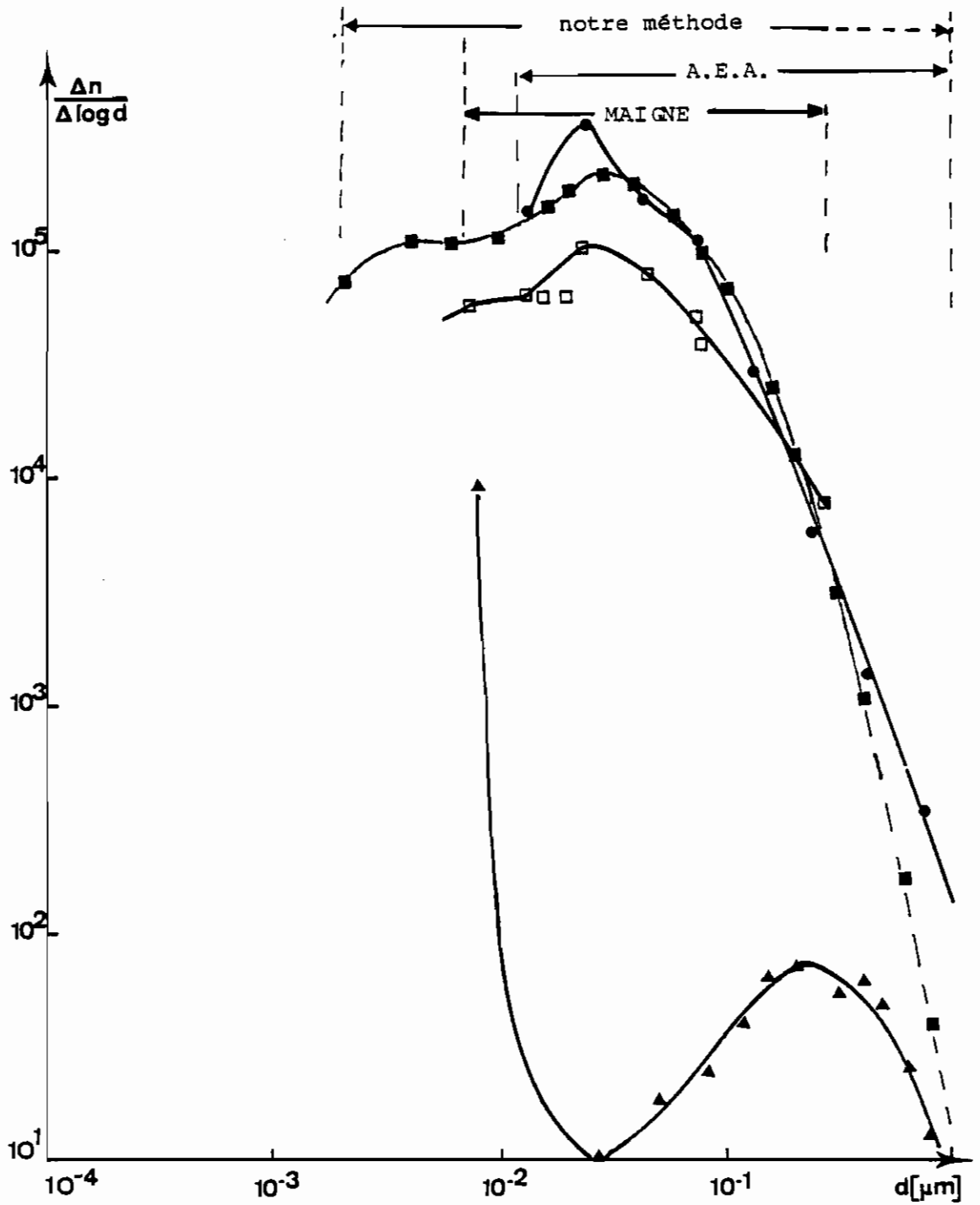
- Le microscope électronique donne des concentrations beaucoup plus faibles que celles obtenues par tous les autres moyens d'étude ; nous avons déjà signalé ci-dessus cette anomalie.

La microscopie électronique indique d'autre part un minimum entre  $2 \cdot 10^{-6}$  cm et  $3 \cdot 10^{-6}$  cm, intervalle où les autres méthodes accusent un maximum ; ceci serait dû au fait que, avec le débit utilisé au cours de nos prélèvements sur membranes, l'efficacité de captation de celles-ci est minimale pour des diamètres voisins de  $2 \cdot 10^{-6}$  cm.

- La nouvelle méthode d'intégration supprime les discontinuités observées précédemment au passage d'un mode à l'autre. Les maxima qu'on obtient dans la zone  $10^{-6}$  -  $10^{-5}$  cm sont pratiquement les mêmes que ceux donnés par le compteur électrique et la méthode de MAIGNE. Cette nouvelle méthode permet également l'extrapolation de la granulométrie jusqu'au rayon critique, indépendamment du débit maximum ; ce qui n'est pas le cas dans la méthode de MAIGNE où, pour une batterie de diffusion donnée, le rayon minimum est imposé par ce débit maximum. Dans nos calculs nous avons pris pour rayon critique la valeur  $10^{-7}$  cm, ce qui est compatible avec celle déterminée expérimentalement par PERRIN et al. (76). Cette méthode peut également permettre une extrapolation à des diamètres supérieurs à  $2 \cdot 10^{-5}$  cm, la forme des courbes étant définie dans la zone de validité des batteries de dif-

fusion ( $0.001-0.1\mu\text{m}$  de rayon). Notre méthode peut donc, dans un domaine plus étendu que les autres (Fig. IV-12), donner de bonnes indications sur la granulométrie d'un aérosol. Sur les courbes, la partie extrapolée est indiquée en traits discontinus.

- Les données des batteries de diffusion, traitées par notre méthode ou par celle de MAIGNE, donnent, pour le mode des fines particules, des "densités" toujours plus faibles que celles du mode des grosses particules, ce qui est en contradiction avec les travaux de WALTER (109). Ce genre de résultat, déjà obtenu par STOREBØ (97) au cours de l'étude théorique de la coagulation d'un aérosol, ne peut cependant se reproduire systématiquement dans l'atmosphère libre. En effet, le taux de production des particules d'aérosol dans l'air en milieu urbain ne peut être ni constant, ni constamment faible. L'anomalie observée serait-elle alors due aux variations de concentration de l'aérosol entre le moment de son prélèvement dans l'atmosphère et celui du comptage à travers la sphère S de tranquillisation (Fig. III-9) ? C'est pour répondre à cette question que nous avons évalué la baisse de concentration par perte de particules dans le dispositif expérimental.



- Batteries [méthode Maigné]
- Batteries [notre méthode] ( ---- extrapolation )
- ▲ Microscope électronique
- Compteur de Whitby

fig. IV-12: résultats comparés (Aérosol atmosphérique à Guyancourt : 31/10/75 vers 11h)

## CHAPITRE V

### DES PERTES DANS LES CONDUITES AUX PERTES DE COMPTAGE

#### 1. CALCUL DES PERTES DANS LES CONDUITES ET DANS LA SPHERE.

Ces pertes ont lieu soit dans les conduites  $L_1$  de l'atmosphère à la sphère de stockage et  $L_2$  de celle-ci au compteur de noyaux, soit dans la sphère elle-même. Nous admettons qu'il n'y a pas de convection, ni de perte d'origine électrique, électrostatique ou acoustique.

##### 1.1. Pertes dans les conduites.

Dans les conduites où la vitesse d'écoulement de l'air est relativement faible, ces pertes sont surtout dues à la diffusion brownienne.

##### 1.1.1. Pertes dans $L_1$ .

Les calculs de diffusion, au débit  $Q$  de vidange (400 l/mn), donnent une atténuation très faible de la concentration de l'aérosol lors de son passage à travers les conduites  $L_1$ . On obtient en effet, pour  $L_1 = 300$  cm, les résultats du

tableau V-1 où sont indiquées aussi les valeurs correspondant à  $Q = 6$  l/min.

On constate que  $n$  est très voisin de  $n_0$ . Même pour  $d = 2 \cdot 10^{-7}$  cm et  $Q = 400$  l/min, l'atténuation est inférieure à 2 % et ne peut donc expliquer la position du mode des fines particules dans les résultats des batteries.

Pour le même diamètre, mais pour 6 l/min (débit correspondant à la première mesure qui dure 3.5 min), l'atténuation atteint 27 % et ne descend au-dessous de 5 % que pour  $d > 8 \cdot 10^{-7}$  cm. Ces dernières pertes sont peu importantes puisqu'elles interviennent pour de faibles volumes lors des mesures et non de la vidange. En effet, il arrive ainsi dans la sphère, en 3,5 mn., 21 l d'air. On a alors, dans le cas le plus défavorable (pertes de 27 %), en ramenant au volume de la sphère de 800 l, une perte de 0,7 %.

Au repos ( $Q = 0$ ) nous pouvons calculer ces pertes par diffusion en considérant, comme FÜRTH (37) pour un aérosol monodispersé contenant des particules de coefficient de diffusion  $D$  dans un cylindre de rayon  $R$  et de la longueur infinie, l'équation :

$$n/n_0 = \sum_1 (4/a_i^2) \exp(-a_i^2 tD/R^2) \quad (V-1)$$

où

$t$  = durée du repos

$a_i$  =  $i^{\text{ième}}$  racine de la fonction de Bessel de première espèce d'ordre zéro.

TABLEAU V-1  
PERTES DANS LES CONDUITES

a) Rayon ( $10^{-6}$  cm)

0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6
0.7	0.8	0.9	1.0	1.1	1.2
1.3	1.4	1.5	1.6	1.7	1.8
1.9	2.0	2.1	2.2	2.3	2.4
2.5	2.6	2.7	2.8	2.9	3.0
3.1	3.2	3.3	3.4	3.5	3.6
3.7	3.8	3.9	4.0	4.1	4.2
4.3	4.4	4.5	4.6	4.7	4.8
4.9	5.0	5.1	5.2	5.3	5.4
5.5.	5.6	5.7	5.8	5.9	6.0

b)  $n/n_0$  pour  $Q = 400$  l/min

0.98285	0.99155	0.99336	0.99402	0.99432	0.99449
0.99459	0.99466	0.99471	0.99474	0.99476	0.99478
0.9948	0.99481	0.99482	0.99482	0.99488	0.99484
0.99484	0.99485	0.99485	0.99485	0.99485	0.99486
0.99488	0.99486	0.99486	0.99486	0.99486	0.99487
0.99467	0.99487	0.99487	0.99487	0.99487	0.99487
0.99487	0.99487	0.99487	0.99487	0.99487	0.99487
0.99487	0.99487	0.99487	0.99488	0.99488	0.99488
0.99488	0.99488	0.99488	0.99488	0.99488	0.99488
0.99488	0.99488	0.99488	0.99488	0.99488	0.99488

c)  $n/n_0$  pour  $Q = 6$  l/min

0.73072	0.8906	0.93558	0.95581	0.96703	0.97401
0.97868	0.98196	0.98434	0.98612	0.98749	0.98855
0.98941	0.9901	0.99066	0.99113	0.99153	0.99186
0.99214	0.99239	0.9926	0.99279	0.99295	0.9931
0.99322	0.99334	0.99344	0.99353	0.99362	0.99369
0.99376	0.99382	0.99388	0.99393	0.99398	0.99402
0.99406	0.9941	0.99414	0.99417	0.9942	0.99423
0.99425	0.99428	0.9943	0.99432	0.99434	0.99436
0.99438	0.9944	0.99441	0.99443	0.99444	0.99446
0.99447	0.99448	0.9945	0.99451	0.99452	0.99453

$n$  et  $n_0$  sont les concentrations au début et à la fin de la période de repos.

En fait, le repos absolu ne dure qu'une ou deux secondes. C'est le temps nécessaire pour la commutation du CNC du filtre au circuit des batteries lorsque toutes les pompes sont arrêtées.

En prenant :

$t = 2$  secondes

$2R = 3$  cm (tuyau de liaison atmosphère - sphère)

et en se limitant aux 56 premiers termes, on a les résultats du tableau V-2; à  $r=10^{-7}$  cm on atteint déjà la valeur maximale de  $n/n_0$  correspondant aux 56 racines de  $J_0(\alpha) = 0$  utilisées.

Ici  $n/n_0$  prend la valeur 0.99 lorsque  $d = 10^{-7}$  cm. Les pertes sont donc moins importantes que ci-dessus et ne concernent qu'un faible volume, celui du tuyau (2 litres). En ramenant comme ci-dessus à la sphère de 800 l, toutes les pertes du tableau V-2 doivent être multipliées par  $2.5 \cdot 10^{-3}$ . Ce qui donne par exemple 0.002 % pour  $d = 2 \cdot 10^{-7}$  cm et 0,002 % pour  $d = 6 \cdot 10^{-7}$  cm. Ces pertes sont donc, ici aussi, très faibles et ne peuvent expliquer l'anomalie observée.

#### 1.1.2. Pertes dans $L_2$ .

Avec le débit d'aspiration du CNC, un calcul de diffusion donne également les pertes (tableau V-3) à travers  $L_2$





(75 cm). Les rayons sont les mêmes qu'au tableau V-1 .

TABLEAU V-3

ATTENUATION DE  $n_0$  A TRAVERS LE TUYAU  $L_2$

0.89101	0.955615	0.97431	0.98222	0.98635	0.98876
0.99026	0.9913	0.99201	0.99253	0.99292	0.99322
0.99345	0.999364	0.99379	0.99392	0.99402	0.99411
0.99416	0.99425	0.9943	0.99435	0.99439	0.99443
0.99446	0.99449	0.99452	0.99454	0.99456	0.99458
0.9946	0.99462	0.99463	0.99464	0.99466	0.99467
0.99468	0.99469	0.9947	0.9947	0.00471	0.99472
0.99473	0.99473	0.99474	0.99474	0.99475	0.99475
0.99476	0.99476	0.99477	0.99477	0.99477	0.99478
0.99478	0.99478	0.99479	0.99479	0.99479	0.99479

On constate que les atténuations sont, une fois de plus, très faibles pour  $d > 4 \cdot 10^{-7}$  cm, diamètre au-dessus duquel les pertes sont inférieures à 5 %. Elles ne peuvent donc expliquer l'allure de nos courbes entre  $6 \cdot 10^{-7}$  cm et  $3 \cdot 10^{-6}$  cm.

Pendant la période de repos, les pertes dans  $L_2$ , calculées comme au paragraphe 1.1.1. à partir de l'équation V-1, sont indiquées au tableau V-4 . On a pris pour les calculs :

$$R = 0,5 \text{ cm}$$

$$t = 120 \text{ s (durée moyenne du prélèvement par le CNC sur le circuit filtre).}$$

Ici, en régime statique, les pertes sont considérables mais n'interviennent pas dans les résultats puisque, une fois le CNC branché sur le circuit batterie, on attend la vidange de  $L_2$ . Celle-ci s'effectue rapidement et l'indication du compteur se stabilise en une dizaine de secondes au plus. Ainsi, on ne tiendra compte dans  $L_2$  que des pertes en régime dynamique.



## 1.2. Pertes dans la sphère.

Le séjour de l'aérosol dans la sphère est assez long puisqu'une expérience dure en tout 8 min. Sur la figure V-1 sont représentés quelques exemples de variation de la concentration d'un aérosol atmosphérique durant son séjour dans la sphère. On voit que, au bout des 8 min que dure chaque expérience, la baisse de concentration est comprise entre 10 % et 14 % de sa valeur initiale. Ici, les pertes sont principalement de deux ordres ; captation par les parois et coagulation. Nous évaluerons de façon indépendante les pertes de différentes origines.

### 1.2.1. Captation sur les parois.

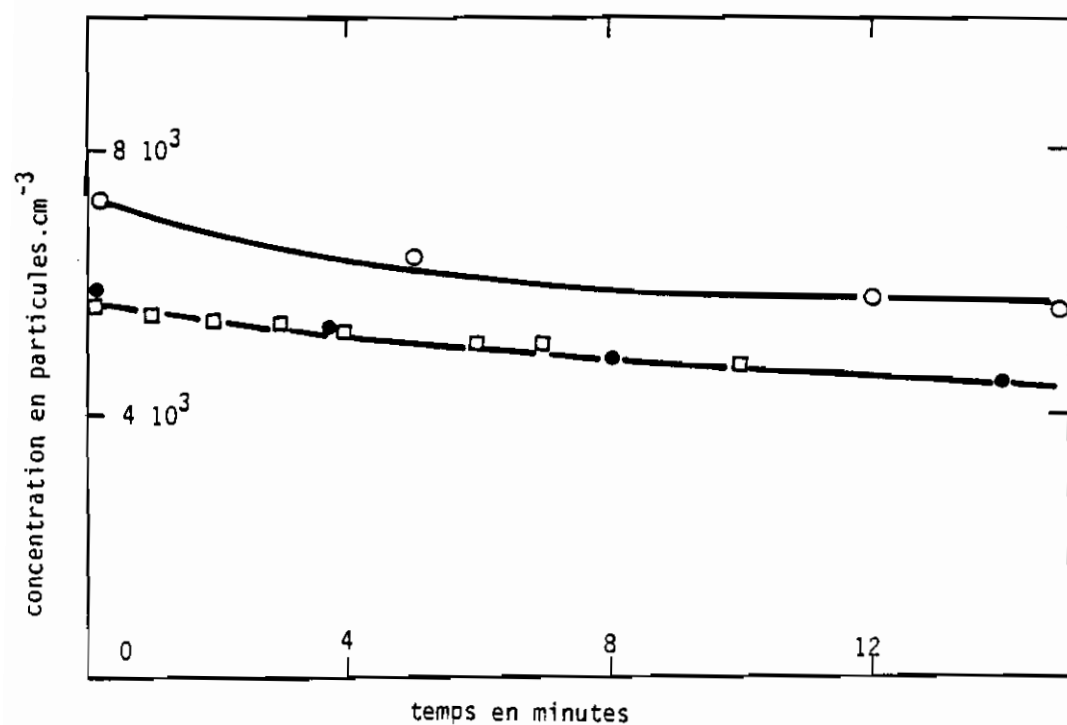
Cette captation est due à l'action combinée de la diffusion et de la sédimentation par gravité.

#### 1°) Sédimentation par gravité.

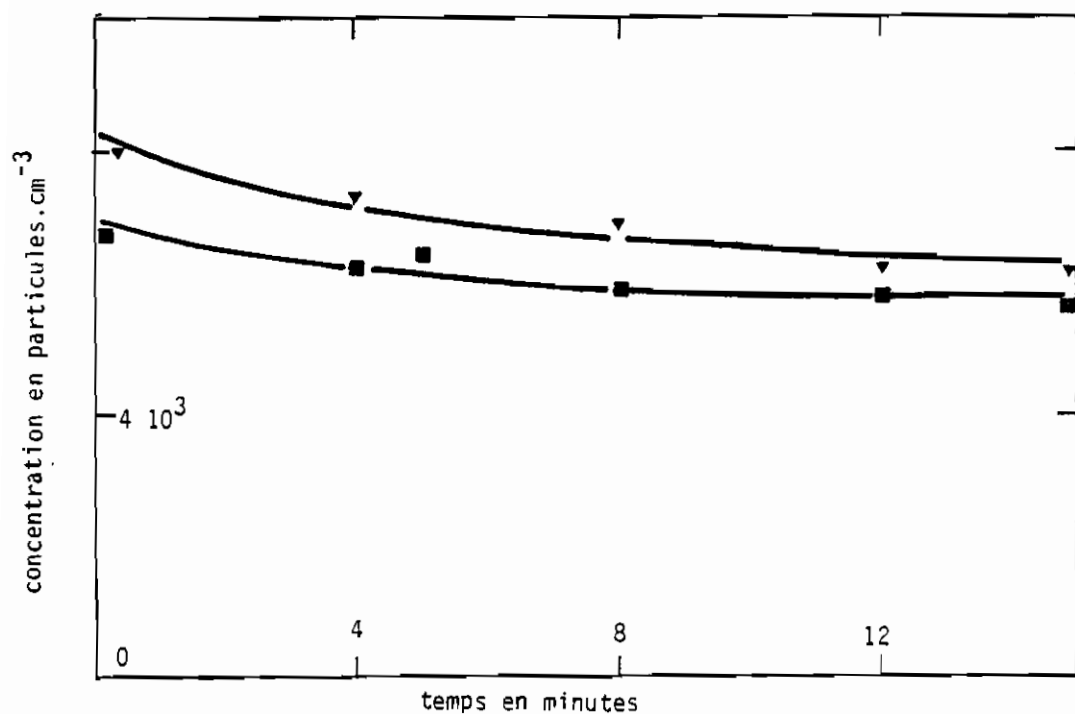
Les variations de concentration par sédimentation peuvent se mettre sous la forme :

$$\frac{dn_i}{dt} = k n_i r_i^2 \quad (V-2)$$

où  $n_i$  est la concentration des particules de rayon  $r_i$  et  $k$  une constante qu'on peut déterminer à partir de la vitesse



a) ● 13/1/75 vers 15h30    ○ 13/1/75 vers 18h    □ 9/5/75 vers 18h



b) ■ 13/1/75 vers 17h    ▼ 14/1/75 vers 8h30

Fig. V-1 : VARIATION DE LA CONCENTRATION DANS LA SPHERE EN FONCTION DU TEMPS (Parti:

$v_s$  de chute d'une particule de masse volumique  $\rho$  dans un champ de gravitation de module  $g$ .

En effet, si  $M_i$  est la mobilité d'une particule de rayon  $r_i$  dans un gaz de viscosité  $\eta$  et de masse volumique  $\rho_a$ , on a :

$$M_i = \frac{1}{6\pi\eta r_i} \left( 1 + \frac{A\lambda}{r_i} + \frac{B\lambda}{r_i} \exp\left(-C \frac{r_i}{\lambda}\right) \right)$$

où  $A$ ,  $B$ ,  $C$  et  $\lambda$  ont les mêmes significations et les mêmes valeurs qu'au paragraphe II-1-2-3.

Si nous posons avec KASTEN (56)  $\rho \gg \rho_a$ , ce qui est le cas dans l'air, la force de poussée de cet air étant négligeable devant le poids de la particule, la résultante des forces appliquées se réduit alors à la force de gravitation.

$$F = \frac{4\pi}{3} r_i^3 \rho g$$

D'où la vitesse de chute des particules dans une atmosphère calme :

$$v_s = F.M = \frac{2\rho}{9\eta} r_i^2 g \left( 1 + \frac{A\lambda}{r_i} + \frac{B\lambda}{r_i} \exp\left(-C r_i/\lambda\right) \right) \quad (V-3)$$

Quelques valeurs numériques sont données dans le tableau V-5 où sont également indiquées les hauteurs de chute  $l_i$ ;  $l_i$  désigne la distance parcourue par une particule de rayon  $r_i$  pendant la durée de l'expérience.

TABLEAU V-5  
HAUTEUR DE CHUTE DES PARTICULES D'AEROSOL

$r$ ( $\mu\text{m}$ )	0.003	0.01	0.03	0.1	0.3	1
$v_s$ (cm/S)	$4.1 \cdot 10^{-6}$	$1.4 \cdot 10^{-5}$	$4.8 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-4}$	$1.4 \cdot 10^{-3}$	$1.3 \cdot 10^{-2}$
$l_i$ (cm)	$1.98 \cdot 10^{-3}$	$6.86 \cdot 10^{-3}$	$2.31 \cdot 10^{-2}$	0.11	0.67	5.33

Ces résultats montrent donc que, pour des particules de rayon inférieur à  $0,3 \mu\text{m}$ , les hauteurs de chute étant ridiculement faibles la captation par gravité pendant l'intervalle de temps qui nous intéresse est tout à fait négligeable.

Les pertes par captation sur les parois se réduisent donc à la captation par diffusion.

### 2°) Captation par diffusion.

Supposons l'origine O des coordonnées placée au centre de la sphère S de rayon  $R_0$ . Soit  $r$  la distance comptée à partir de O. Nous admettrons qu'à l'instant initial la concentration dans la sphère est uniforme et égale à  $n_0$  et qu'elle est nulle pour  $r = R_0$ . A l'instant  $t$ , la concentration est  $n$  pour tout ( $r < R_0$ ) et nulle pour  $r = R_0$ . Soit  $w_1(r, t)$  la probabilité, à l'instant  $t$ , de trouver à la distance  $r$  une particule initialement située en O. A partir de la théorie de SMOLUKOVSKI, CHANDASEKAR (18) donne :

$$w_1 = (4 Dt)^{-3/2} \exp (-r^2/4Dt) dv$$

où  $dv$  est l'élément de volume.

On en déduit la probabilité pour qu'une particule située à l'instant initial dans le volume élémentaire  $v$  se trouve hors de ce volume au temps  $t$  :

$$w = (4 Dt)^{-3/2} \int_V \exp (-r^2/4Dt) dv$$

BUCHWALD (18) démontre que l'atténuation  $n/n_0$  peut alors se mettre sous la forme :

$$n/n_0 = \frac{6}{\pi^2} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{i^2} (-\pi^2 i^2 Dt/R_0^2) \quad (V-4)$$

Ici :

$$t = 480 \text{ S}$$

$$R_0 = 50 \text{ cm}$$

En se limitant aux 50 premiers termes on a les résultats du tableau V-6.

On constate que pour  $r = 10^{-7}$  cm, les pertes sont de 16 % Elles ne représentent plus que 5,5 % à  $r = 3 \cdot 10^{-7}$  cm. Dès que les rayons deviennent supérieurs à  $3,5 \cdot 10^{-7}$  cm.

Il nous reste maintenant à déterminer les pertes par coagulation.

TABLEAU V-6

DIFFUSION DANS LA SPHERE DE STOCKAGEa) Rayons des particules.

	0.100E-06	0.150E-06	0.200E-06	0.250E-06
0.300E-06	0.350E-06	0.400E-06	0.540E-06	0.500E-06
0.550E-06	0.600E-06	0.650E-06	0.700E-06	0.750E-06
0.800E-06	0.850E-06	0.900E-06	0.950E-06	0.100E-05
0.105E-05	0.110E-05	0.115E-05	0.120E-05	0.125E-05
0.130E-05	0.135E-05	0.140E-05	0.145E-05	0.150E-05
0.155E-05	0.160E-05	0.165E-05	0.170E-05	0.175E-05
0.180E-05	0.185E-05	0.190E-05	0.195E-05	0.200E-05
0.205E-05	0.215E-05	0.235E-05	0.275E-05	0.355E-05
0.515E-05	0.835E-05	0.147E-04	0.275E-04	0.531E-04

Coef. Dif.

	0.1256E-01	0.5598E-02	0.3158E-02	0.2027E-02
0.1412E-02	0.1040E-02	0.7988E-03	0.6330E-03	0.5142E-03
0.4262E-03	0.3592E-03	0.3070E-03	0.2655E-03	0.2319E-03
0.2045E-03	0.1816E-03	0.1625E-03	0.1463E-03	0.1324E-03
0.1204E-03	0.1101E-03	0.1010E-03	0.9304E-04	0.8600E-04
0.7974E-04	0.7416E-04	0.6916E-04	0.6467E-04	0.6061E-04
0.5693E-04	0.5358E-04	0.5053E-04	0.4774E-04	0.4519E-04
0.4284E-04	0.4067E-04	0.3868E-04	0.3683E-04	0.3511E-04
0.3352E-04	0.3065E-04	0.2596E-04	0.1941E-04	0.1220E-04
0.6347E-05	0.2862E-05	0.1228E-05	0.5406E-06	0.2490E-06

b) Atténuations

	0.841010E 00	0.892246E 00	0.918463E 00	0.934385E 00
0.945078E 00	0.952751E 00	0.958512E 00	0.962979E 00	0.966523E 00
0.969384E 00	0.971726E 00	0.973665E 00	0.975286E 00	0.976653E 00
0.977815E 00	0.978810E 00	0.979668E 00	0.980412E 00	0.981062E 00
0.981631E 00	0.982133E 00	0.982578E 00	0.982974E 00	0.983327E 00
0.983644E 00	0.983929E 00	0.984187E 00	0.984420E 00	0.984632E 00
0.984826E 00	0.985002E 00	0.985164E 00	0.985313E 00	0.985450E 00
0.985576E 00	0.985693E 00	0.985801E 00	0.985901E 00	0.985994E 00
0.986081E 00	0.986238E 00	0.986496E 00	0.986860E 00	0.987265E 00
0.987597E 00	0.987796E 00	0.987890E 00	0.987930E 00	0.987946E 00



### 1.2.2. Pertes par coagulation.

La coagulation a lieu d'une part entre particules de même diamètre et d'autre part entre particules de diamètres différents. Dans le premier cas, si  $n$  est la concentration des particules de rayon  $r$  et de coefficient de diffusion  $D$ , l'équation fondamentale de la coagulation s'écrit :

$$\frac{dn}{dt} = - Kn^2 \quad (V-5)$$

avec :

$$K = \beta \cdot K_0$$

$$K_0 = 8\pi r D$$

$K$  est le coefficient de coagulation et  $\beta$  le coefficient de correction de FUCHS (35).

L'intégration de cette équation donne  $n$  en fonction du temps :

$$n = \frac{n_0}{1 + Kn_0 t} \quad (V-6)$$

Pour un aérosol polydispersé, la variation de la concentration  $n_i$  des particules de rayon  $r_i$  peut se mettre sous la forme :

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} K_{jk} n_j n_k - \sum_{j=1}^N K_{ij} n_i n_j \quad (V-7)$$

Le premier terme du second membre de cette équation représente la formation des particules  $i$  et le second terme représente leur disparition. Si on fait l'hypothèse qu'il ne se forme pas de particule  $i$ , il vient :

$$dn_i/dt = - n_i \sum_{j=1}^N n_j K_{ij} \quad (V-8)$$

où  $N$  est la classe de rayon utilisé et

$$K_{ij} = 8\pi \frac{r_i + r_j}{2} \cdot \frac{D_i + D_j}{2} \cdot \beta_{ij}$$

Dans le cas d'un aérosol à deux composantes  $n_1$  et  $n_2$  l'équation V-8 se réduit à :

$$dn_1/dt = - K_{11} n_1^2 - K_{12} n_1 n_2$$

Au second membre de cette équation, le premier terme représente la coagulation des particules 1 entre elles et le second terme correspond à la fixation de 1 sur 2. En tenant compte de la fixation des noyaux 2 les uns sur les autres, le problème de la baisse de concentration de 1 revient à la résolution du système :

$$\begin{aligned} dn_1/dt &= - K_{11} n_1^2 - K_{12} n_1 n_2 \\ dn_2/dt &= - K_{22} n_2^2 \end{aligned} \quad (V-9)$$

La seconde équation de ce système donne :

$$n_2 = \frac{n_{o2}}{1 + K_{22} n_{o2} t}$$

D'où la relation :

$$dn_1/dt + K_{11} n_1^2 + K_{12} \frac{n_{o2}}{1 + K_{22} n_{o2} t} n_1 = 0 \quad (V-10)$$

qui tient compte des trois processus.

Dans le tableau V-7 sont portés des exemples numériques calculés à partir de l'équation V-6 pour  $t = 480$  s. On constate que lorsque  $n_o$  est constant et égal à  $10^5$  particules. $\text{cm}^{-3}$ , les pertes sont de 2 % pour  $r = 10^{-7}$  cm, 1 % quand  $r = 0,002$   $\mu\text{m}$ , elles atteignent un maximum de 5,5 % à  $r = 10^{-6}$  cm pour décroître ensuite.

Les différentes périodes, c'est-à-dire les temps nécessaires pour que les concentrations diminuent de moitié, sont indiquées dans le même tableau.

En tenant compte du fait que dans l'atmosphère, au moment de leur formation, les particules de faibles dimensions sont plus nombreuses que les grosses, du moins dans le cas urbain à pollution mécanique faible, on a les valeurs du tableau V-7-b. Les périodes passent alors de 45 mn pour  $r = 10^{-7}$  cm et  $n_o = 8.10^5$  particules. $\text{cm}^{-3}$  à 22 jours quand  $r = 10^{-5}$  cm et  $n_o = 1000$ .

La durée de nos mesures est faible par rapport à ces périodes.

Pour un aérosol bidispersé, la résolution de l'équation V-10 pour :

$$\begin{aligned} r_1 &= 10^{-7} \text{ cm} \\ r_2 &= 10^{-6} \text{ cm} \\ n_{o1} &= 8 \cdot 10^5 / \text{cm}^3 \\ n_{o2} &= 10^5 / \text{cm}^3 \\ K_{11} &= 4,5 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 / \text{s} \\ K_{12} &= 90 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 / \text{s} \\ K_{22} &= 12 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3 / \text{s} \end{aligned}$$

donne les résultats suivants en fonction du temps (tableau V-8).

En 8 minutes, les pertes par attachement de 1 sur 2 sont donc d'environ 40 %. Cette baisse atteint 50 % en 10 minutes.

A partir de concentrations différentes, DAVIS (24) donne les périodes du tableau V-9 où :

$$\tau = \frac{1}{K_{11} (n_1 n_2)^{-1/2}}$$

Par conséquent, si des particules de  $10^{-7}$  cm de rayon disparaissent très rapidement par leur fixation sur de plus gros noyaux, celles de  $10^{-6}$  cm varient beaucoup plus lentement et la coagulation ne peut donc, à elle seule, expliquer les anomalies observées sur nos courbes (faible pourcentage du maximum situé à  $10^{-6}$  cm par rapport à celui situé à  $5 \cdot 10^{-6}$  cm).

TABLEAU V-7

PERTES PAR COAGULATION HOMOGENEa)  $n_0$  constant =  $10^5$ 

r ( $\mu\text{m}$ )	0.001	0.002	0.005	0.01	0.05	0.1
$K \times 10^{10}$ ( $\text{cm}^3/\text{S}$ )	4.5	2	9	12	7.5.	5.2
n particule / $\text{cm}^3$	97 888	9 9049	0 5859	94 554	96 659	97 565
Pertes (%)	2.2	1	4.2.	5.5	3.3	2.4
$\tau$	6 h	14 h	3 h	2 h	4 h	5 h

b)  $n_0$  variable

r ( $\mu\text{m}$ )	0.001	0.002	0.005	0.01	0.05	0.1
$K \times 10^{10}$ ( $\text{cm}^3/\text{S}$ )	4.5	2	9	12	7.2	5.3
$n_0$	$8 \times 10^5$	$4 \times 10^5$	$10^5$	$5 \times 10^4$	$2 \times 10^4$	$10^3$
n	$6.8 \times 10^5$	$3.8 \times 10^5$	$0.96 \times 10^5$	$4.86 \times 10^4$	$1.98 \times 10^4$	999.7
Pertes (%)	15	3.6	4	3	1	0.03
$\tau$	45 mn	3 h 30	3 h	4 h 30	19 h	22 j

TABLEAU V-8 : COAGULATION HETEROGENE

t (min)	0	2	4	6	8	10	20	30	60
$n_1$ ( $\times 10^{-5}$ )	8	6.9	6	5.2	4.6	4.1	2.3	1.4	0.4

TABLEAU V-9  
COAGULATION HETEROGENE

r (µm)	0.01 et 0.1	0.01 et 1	0.1 et 1
K 12 (X10 <sup>10</sup> cm <sup>3</sup> /S)	80	840	16
N <sub>1</sub> N <sub>2</sub>	2 10 <sup>4</sup>	600	30
τ	3 h	5 h	210 j

En conclusion, les calculs que nous venons de faire montrent qu'on peut négliger :

1°) Les pertes par diffusion dans les tuyaux pendant la période de repos ;

2°) Les pertes par diffusion dans les tuyaux au cours de l'aspiration lorsque les particules ont un diamètre supérieur à 10<sup>-6</sup> cm, auquel cas l'atténuation  $1-n/n_0$  est inférieur à 5 % ;

3°) La captation sur les parois de la sphère par sédimentation gravitationnelle ;

4°) La diffusion dans la sphère pour les noyaux de rayon supérieur à 3 10<sup>-7</sup> cm ;

5°) La coagulation des noyaux de rayon supérieur à 5.10<sup>-6</sup> cm.

La diffusion dans la sphère des particules de 10<sup>-7</sup> cm de rayon peut atteindre 15 % pendant le temps de stockage (480 S). Encore supposons nous ici qu'il n'y a pas de con-

vection qui augmenterait ces pertes.

La coagulation occasionne les pertes les plus importantes. Nous avons, en effet, vu que ce seul processus peut, pendant le temps  $t$  que dure une série de mesures, diminuer de 40% la concentration des particules de  $10^{-7}$  cm de rayon. Mais cette baisse est beaucoup plus faible pour  $r = 10^{-6}$  cm. Or c'est précisément dans cette dernière zone de dimension que se situe, sur nos granulométries, le maximum dont le niveau, donné par les batteries de diffusion, est toujours bas par rapport au mode des plus grosses particules. Les pertes de particules dans le montage expérimental ne peuvent donc expliquer que très partiellement nos anomalies de distribution.

Cependant, pour ne pas laisser subsister de doute dans ce domaine, nous avons éliminé de notre montage la sphère de stockage et le tuyau  $L_1$  qui permettait la liaison entre cette sphère et l'atmosphère. L'air est alors prélevé directement de l'atmosphère par l'appareillage indiqué au chapitre II (Fig. II-4) ; l'électrovanne  $ev_1$  étant ouverte et  $ev_2$  fermée, on mesure pratiquement en permanence la concentration  $n_0$  dans l'atmosphère ; puis, après la vidange des batteries au débit désiré on ferme  $ev_1$  et on ouvre  $ev_2$ , ce qui permet de déterminer en 10 ou 16 secondes la concentration  $n$  en aval des batteries, avant de revenir à la situation antérieure ( $ev_2$  fermée et  $ev_1$  ouverte). On ne retiendra alors, pour la détermination des granulométries, que des groupes de mesures pour lesquelles  $n_0$  est constant. La figure V-2 montre un exemple de résultat ainsi obtenu en utilisant la nouvelle

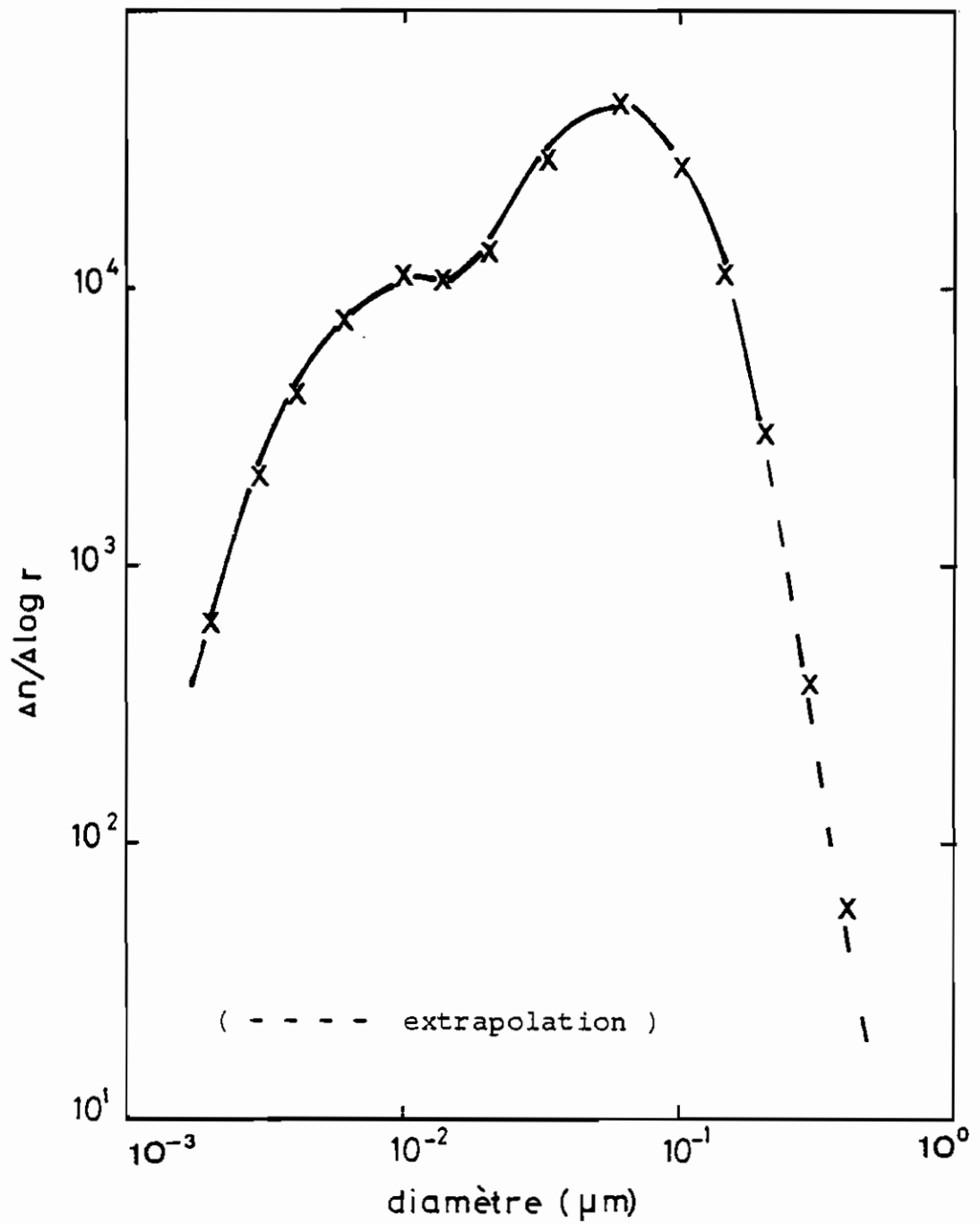


Fig.v-2 :PRELEVEMENT sans SPHERE

(Paris 23/9/75 à 16h15)



méthode d'intégration. On remarque que l'anomalie constatée précédemment persiste malgré la suppression de la sphère de tranquillisation : le mode des fines particules est toujours plus bas que celui des grosses. Cette anomalie ne peut donc être introduite par notre montage expérimental puisque nous avons éliminé de ce montage les principales causes de perte.

Nous nous sommes alors demandé si cette anomalie ne provenait pas du CNC lui-même. C'est ainsi que nous avons été amené à mettre en évidence les pertes de comptage du compteur de noyaux de condensation.

## 2. PERTES DE COMPTAGE.

Ces pertes que nous avons déjà présentées dans un rapport interne (1) ont également été citées par MAIGNE (65) qui les a utilisées pour la correction de ses résultats. Ces pertes de comptage ont également été mises en évidence par LIU (62).

### 2.1. Mise en évidence des pertes.

Nous avons mis en évidence les anomalies de comptage du compteur de noyaux de la General Electric en utilisant un générateur d'aérosols monodispersés (Fig. V-3). Ce générateur, mis au point par LIU (59), a été construit par le

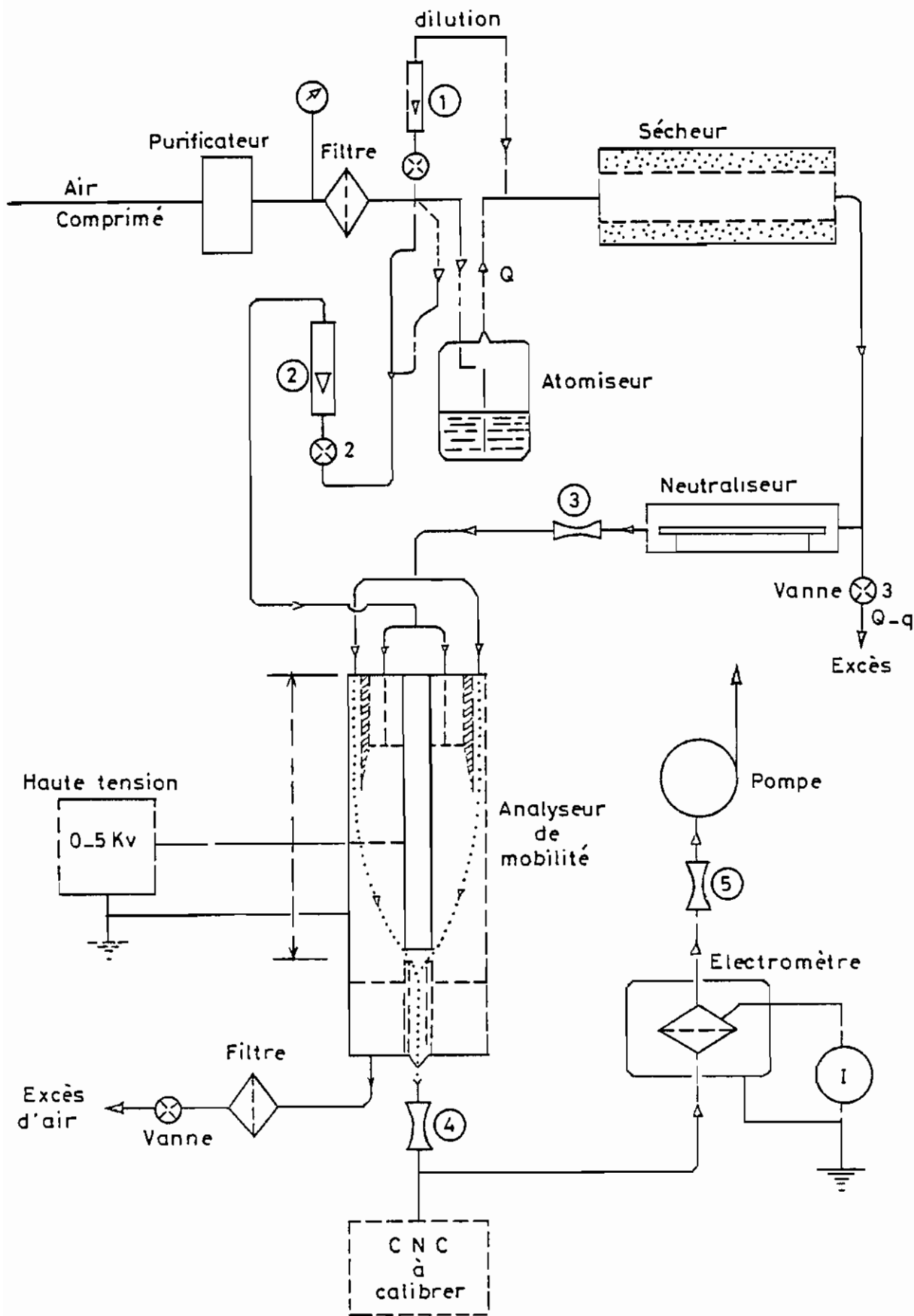
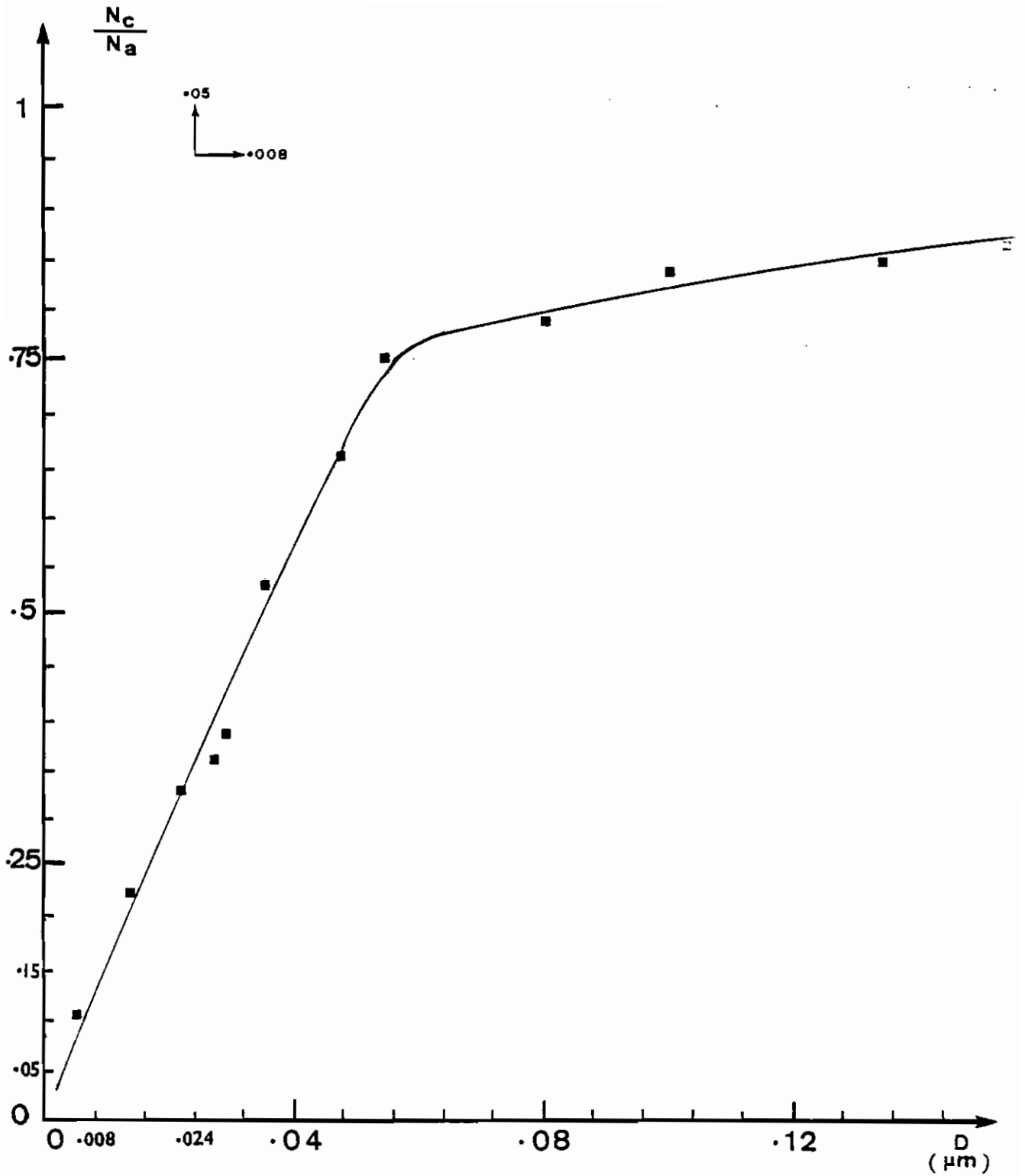


Fig.v-3 : GENERATEUR d'AEROSOLS

Laboratoire de Pollution Atmosphérique du STEPAM au CEA. Il est basé sur le même principe que l'Analyseur Electrique d'Aérosol décrit au chapitre II. Un aérosol polydispersé, produit par pulvérisation d'une solution de chlorure de sodium, est d'abord desséché, puis chargé par une source de plutonium. Un condensateur cylindrique, dans lequel règne un champ électrique  $E$ , permet de prélever, à la distance  $L$  de l'entrée, l'aérosol "monodispersé" dont la concentration  $n_a$  est connue à partir des charges électriques mesurées par un électromètre. La variation du champ électrique permet de sortir des aérosols de diamètres  $d$  variés. On cherche ensuite la concentration  $n_c$  donnée du même aérosol par le CNC. Les mesures effectuées ont montré que le CNC donne des concentrations généralement plus faibles que celles escomptées  $n_a$ . Les variations de

$$P_i = \frac{n_c}{n_a}$$

en fonction de  $d$  sont portées sur la figure V-4. On constate que ce rapport  $n_c/n_a$  diminue avec le diamètre  $d$ . Il prend la valeur 0.15 pour  $d = 10^{-6}$  cm et descend à 0.06 quand  $d = 4 \cdot 10^{-7}$  cm. Il y aurait donc des pertes lors du comptage des noyaux de très faibles dimensions au moyen du CNC de la General Electric. Des pertes analogues ont été décelées au compteur à flux continu du CEA.



D : diamètre des noyaux  
 $N_c$  : concentration CNC  
 $N_a$  : " Electromètre du générateur de Liu

fig. V-4: Rendement de comptage du CNC GE

Mais on peut se demander si les anomalies constatées ne proviennent pas du générateur d'aérosol qui produirait des noyaux de tailles inférieures aux valeurs nominales. Avant de se prononcer sur la validité des résultats que nous venons d'indiquer, il faut donc contrôler le générateur d'aérosols utilisé.

## 2.2. Contrôle du générateur d'aérosols.

Pour vérifier la validité des indications de taille données par le générateur d'aérosols, nous avons employé deux moyens : la diffusion brownienne et la microscopie électronique.

### 2.2.1. Diffusion.

Nous avons utilisé pour cela une batterie de diffusion cylindrique constituée d'un tuyau unique de 12 mm de diamètre et de 600 cm de longueur. Nous avons d'abord calculé, à partir des équations de GORMLEY et KENNEDY et pour un débit de  $55 \text{ cm}^3/\text{s}$ , les rapports  $n/n_0$  pour différents diamètres  $d$  des particules (Fig. V-5). Nous avons ensuite mesuré les rapports expérimentaux pour la même batterie, le même débit et les mêmes diamètres que ci-dessus. Si  $k_d$  est un coefficient de correction,  $i_0$  et  $i$  les courants indiqués par l'électromètre en amont et en aval de la batterie, on a :

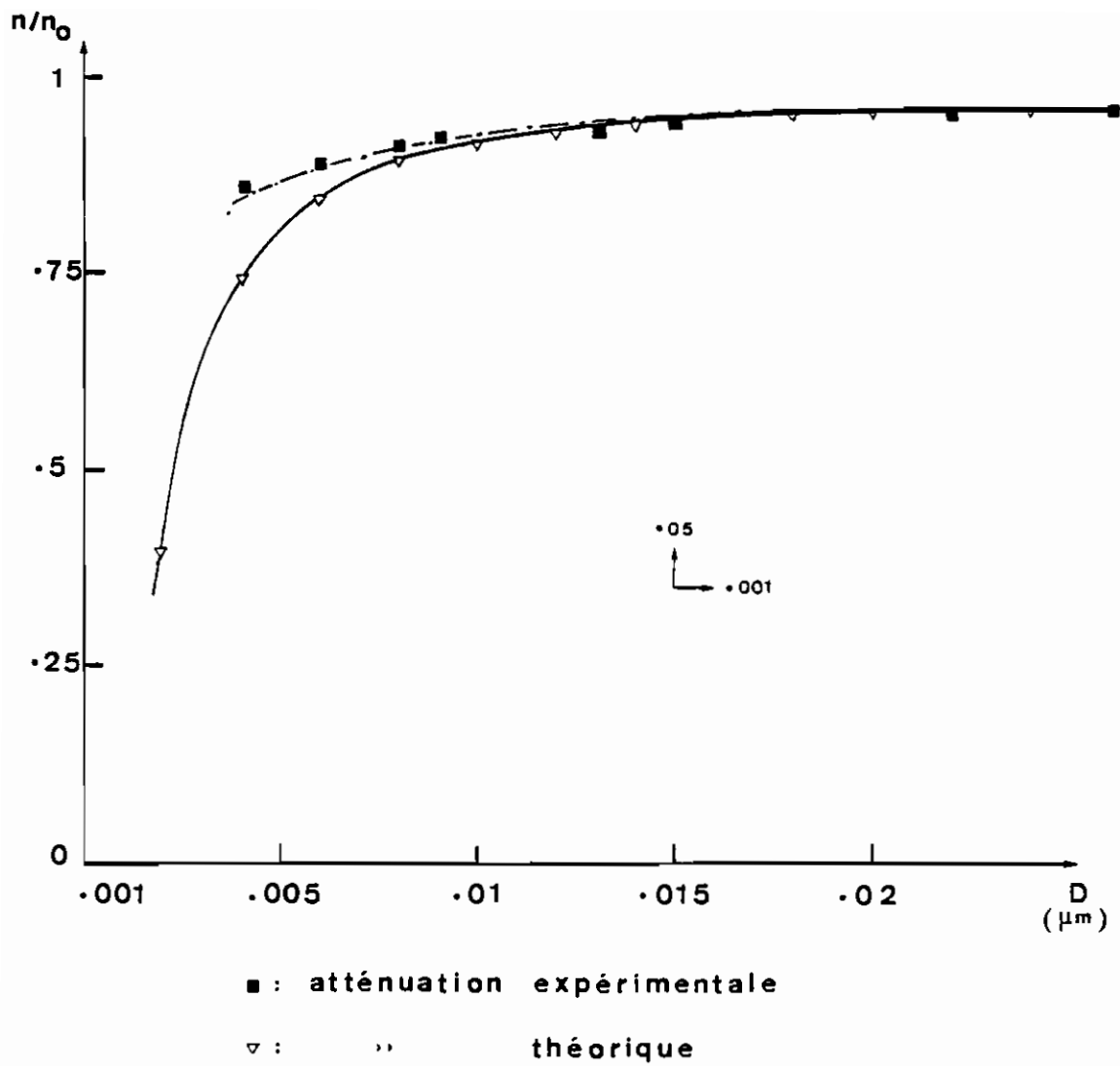


fig.V-5 : Contrôle du générateur

$$n = k_d i$$

$$n_0 = k_d i_0$$

$$n/n_0 = i/i_0$$

L'observation des résultats de la Figure V-5 montre que :

- pour  $d > 10^{-6}$  cm les courbes expérimentales et théoriques coïncident.

- mais pour  $d < 10^{-6}$  cm, la courbe expérimentale correspond à un aérosol plus gros ; en effet, pour un débit donné, le rapport  $n/n_0$  est d'autant plus important que les particules sont grosses.

Nous pouvons donc dire que, aux faibles dimensions ( $d < 10^{-6}$  cm), le générateur donne des particules plus grosses que celles théoriquement escomptées. Cela ne devrait par conséquent pas gêner le comptage.

2.2.2. Au microscope électronique, les prélèvements effectués ont montré qu'il existait, en plus des tailles nominales, un pourcentage non négligeable de particules plus grosses.

Les anomalies signalées ne semblent donc pas dues à la taille des noyaux. On peut penser qu'elles aient pour origine les charges électriques portées par les particules. C'est pour cette raison que nous avons fait des tests en déchargeant cet aérosol.

### 2.3. Décharge des particules.

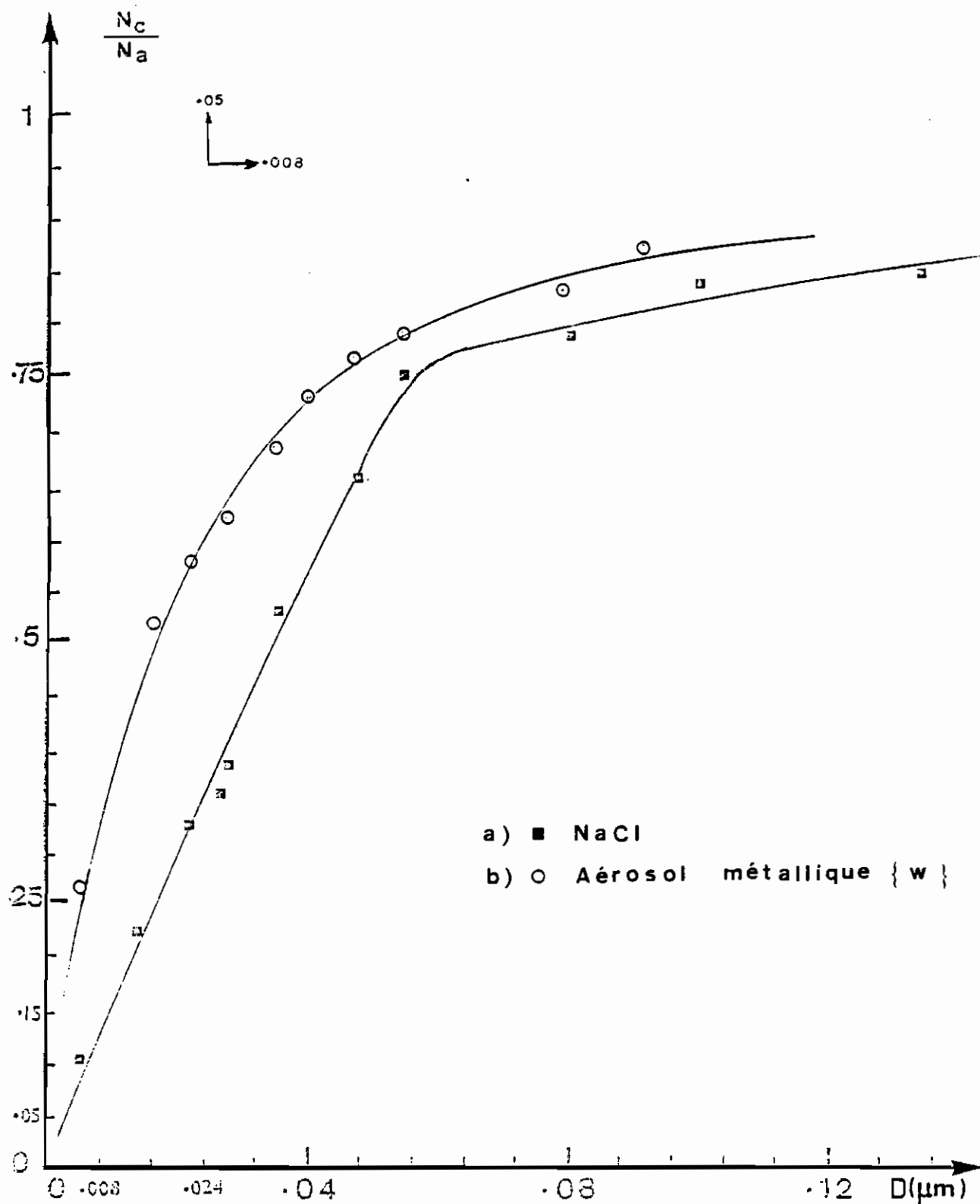
L'aérosol sortant de l'analyseur de mobilité est chargé. Pour le décharger, nous avons utilisé une source de tritium de 200 millicuries placée dans un cylindre à travers lequel passent les particules (61). Nous avons vérifié à l'électromètre que, après cette neutralisation, le courant est bien nul. Avec des concentrations comprises entre 50 000 particules.cm<sup>-3</sup> et 80 000 particules.cm<sup>-3</sup>, aucune différence significative de concentration au CNC avant et après neutralisation n'a été constatée. A ces concentrations, et dans nos conditions expérimentales, la charge électrique n'aurait donc pas d'influence sur le comptage par le CNC de la General Electric utilisé.

Il y a donc une sous-estimation de la concentration des particules ultra-fines de NaCl lors des mesures au moyen du CNC. Mais on peut se demander si cette sous-estimation n'est pas liée à la nature de l'aérosol. C'est pour cela que nous avons refait des vérifications avec un aérosol métallique.

### 2.4. Aérosol métallique.

Les particules sont maintenant produites en chauffant électriquement, par une faible tension U (0-3 V, 0-2 A) et sous atmosphère de gaz inerte qui est ici l'Argon, un fil de tungstène (72). Ces particules, véhiculées par le gaz





D : diamètre des noyaux  
 $N_c$  : concentration CNC  
 $N_a$  : " Electromètre du générateur de Liu

Fig.V-6 Rendement de comptage du CNC GE

rare, remplacent l'aérosol classique de chlorure de sodium dans le générateur de LIU.

L'étalonnage consiste, comme ci-dessus, à déterminer la concentration  $n_c$  en fonction de  $n_a$  pour différentes tailles de noyaux. Les résultats sont portés sur la Figure V-6 où nous avons tracé  $n_c/n_a$  en fonction du diamètre  $d$ .

On constate que :

- La courbe correspondant à l'aérosol métallique est constamment au-dessus de celle donnée par le chlorure de sodium.

- Pour cet aérosol métallique, les différences  $n_c - n_a$  restent très importantes puisque les rapports  $n_c/n_a$  varient entre 0.25 et 0.9.

- A  $d = 4 \cdot 10^{-7}$  cm, on a maintenant  $n_c/n_a = 0.25$  au lieu de 0.06 comme pour NaCl.

Bien que légèrement moins fort, le défaut de comptage persiste avec un aérosol métallique.

Les anomalies de comptage constatées ne peuvent donc provenir ni des dimensions, ni de la nature des aérosols utilisés, ni de leurs charges électriques.

Nous avons également mis en évidence ces pertes de comptage en utilisant un aérosol de radiolyse créé par le rayonnement d'une source de polonium. On voit en effet sur la Figure III-4 donnée plus haut que la courbe 3 qui correspond à un aérosol fin de radiolyse atteint la valeur

zéro à 7mm de mercure, alors qu'à cette valeur de la détente, la courbe 2 (aérosol atmosphérique plus gros) indique encore 10 % de sa valeur maximale. Ce fait est davantage illustré par la Figure V-7 : quand la détente diminue, les concentrations  $n$  indiquées par le CNC tendent d'autant plus rapidement vers zéro que le rayon  $r$  des particules est faible. C'est ainsi que la courbe  $r = 18 \cdot 10^{-8}$  cm atteint la valeur  $n = 0$  pour  $P = 8$  mm de mercure, alors que la courbe  $r = 25 \cdot 10^{-8}$  cm ne donne  $n = 0$  que pour  $P = 6$  mm de mercure ; lorsque  $r = 18 \cdot 10^{-7}$  cm, le CNC indique encore 4 000 particules. $\text{cm}^{-3}$  à  $P = 3$  mm de mercure.

On remarque également sur ces courbes que le palier, obtenu entre 19 et 27 mm de mercure dans le cas d'un aérosol atmosphérique, est très réduit quand on considère un aérosol de  $18 \cdot 10^{-7}$  cm de rayon ; ce palier est totalement inexistant sur les courbes correspondant aux particules plus fines. Ceci signifie que, même en se plaçant dans des conditions de sursaturation maximale, toutes les particules ultra-fines ne seront pas détectées par le CNC.

Il existe donc bien une sous-estimation de la concentration des particules ultra-fines ( $r < 3 \cdot 10^{-6}$  cm) lors des mesures au moyen du CNC. Toutes les causes de ces pertes ne sont pas encore bien connues. Elles peuvent aussi dépendre de la pression ambiante (69).

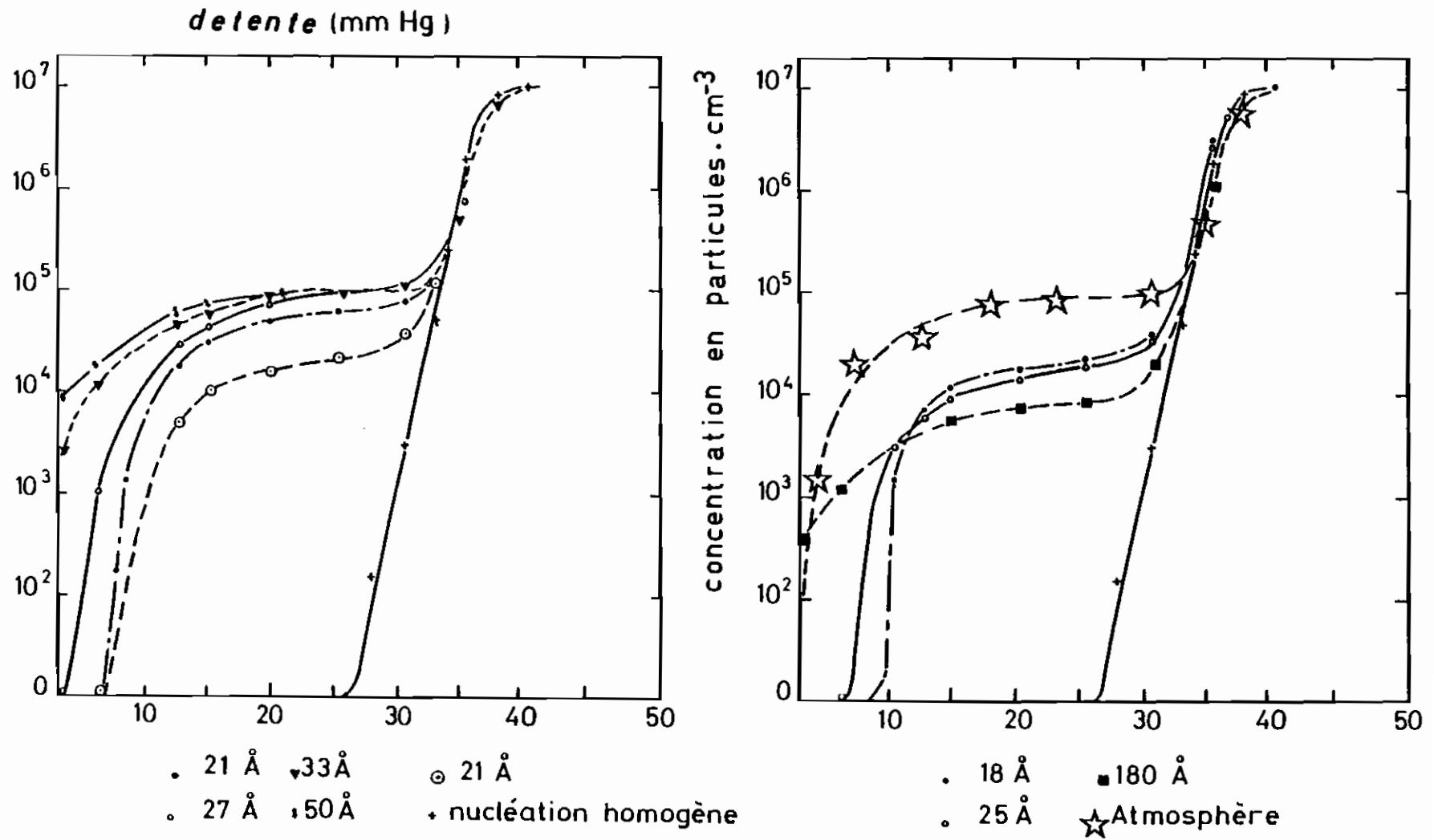


Fig V-7 · CONCENTRATION en FONCTION de la DETENTE pour DIFFERENTS RAYONS des NOYAUX

## 2.5. Causes probables des pertes de comptage.

### 2.5.1. Nature des noyaux.

Nous avons vu avec les deux exemples ci-dessus (tungstène et chlorure de sodium) que l'importance des pertes de comptage varie avec la nature de l'aérosol considéré. Ce fait a été confirmé par HOPPEL et al. (47). Pour être comptés par le CNC, les noyaux doivent grossir suffisamment pour que la lumière qu'ils diffusent soit détectable par ce compteur. Or, la croissance d'une particule au sein de la vapeur sursaturée d'un liquide (31, 32) dépend de l'angle  $\theta$  de contact entre la particule et une gouttelette de liquide (Fig. V-8). Si  $\sigma_{pv}$ ,  $\sigma_{pL}$  et  $\sigma_{Lv}$  sont respectivement les énergies libres par unité de surface aux interfaces particule-vapeur, particule-liquide et liquide-vapeur, on a :

$$\cos \theta = \frac{\sigma_{pv} - \sigma_{pL}}{\sigma_{Lv}}$$

La croissance de ces particules dépendra donc de leur nature et de celle du liquide utilisé dans le CNC. La nature des noyaux intervient également dans l'intensité de la lumière diffusée dans le CNC ; pour des tailles égales, le flux diffusé dépend en effet de l'indice de réfraction.

La condensation des vapeurs de liquide sur les embryons pendant la période de leur croissance dégage d'autre part de la chaleur. Si  $m$  est la masse totale de vapeur condensée et  $\mathcal{L}$  la chaleur latente d'évaporation -condensation, la chaleur totale dégagée au cours de chaque cycle du compteur est  $m\mathcal{L}$ . Cette quantité d'énergie, qui ne peut être évacuée instantanément, provoque une élévation de température dans l'enceinte, ce qui conduit à l'arrêt de la croissance des noyaux.

#### 2.5.2. Baisse de la sursaturation par consommation de vapeur.

Revenons à la courbe de la Figure III-3 représentant les variations de la sursaturation critique en fonction du rayon des particules. Soit  $S_{ri}$  la sursaturation critique correspondant à des noyaux de rayon  $r_i$  (Fig. V-9) ;  $S_{ri}$  est la sursaturation minimale au-dessus de laquelle la croissance est possible. Si des noyaux  $r_i$  arrivent dans une vapeur de sursaturation  $S_{ri} + \epsilon$ , ils grossissent aux dépens de la vapeur et atteignent la taille  $r' = r_i + \delta r_i$  ; supposons que la sursaturation soit alors devenue  $S_r = S_{ri} - \epsilon$ . Cette baisse de sursaturation est d'autant plus importante que la concentration de l'aérosol est élevée. Si  $S_r$  est supérieur à la sursaturation critique ( $S_{r'}$ ) des particules de rayon  $r'$ , la croissance continue par déplacement de l'équilibre dans le sens d'une baisse de sursaturation et

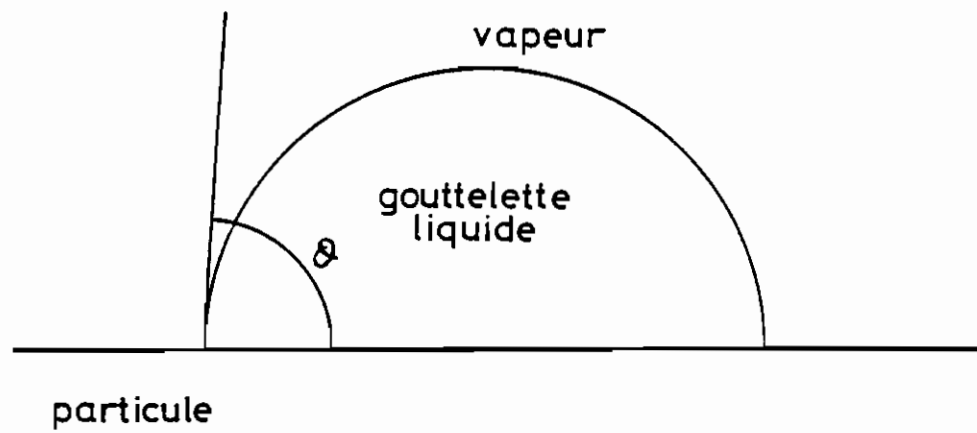


Fig.v-8: ANGLE DE CONTACT ENTRE une GOUTTE-  
LETTE de LIQUIDE et la SURFACE d'une PARTICULE

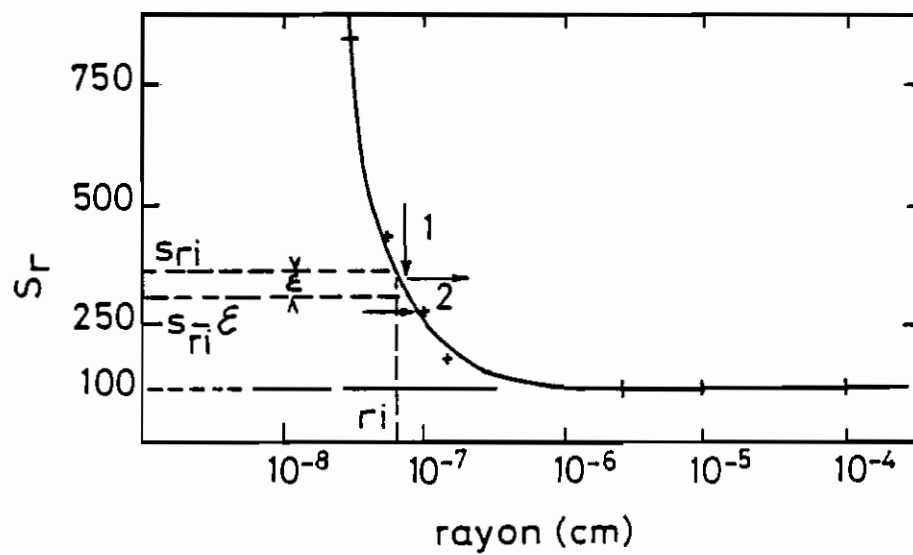


Fig.v-9: CONDITIONS de CROISSANCE d'un NOYAU

d'une augmentation des valeurs du rayon (Fig. V-9) ; mais si  $S_r \leq S_{r_1}$ , la croissance s'arrête. Si, à chaque étape de la croissance (avant chaque déplacement de l'équilibre), toutes les particules grossissaient de la même façon, le comptage du CNC se ferait en "tout" ou "rien" : ou bien on compte toutes les particules présentes parce qu'elles ont toutes suffisamment grossi, ou bien on n'en compte aucune, leur croissance étant arrêtée avant le seuil de détection photoélectrique. Or les résultats ci-dessus (Fig. V-4, V-5 et V-7) montrent que les choses se passent différemment : à chaque étape de la croissance, une partie seulement des particules atteindrait la taille suffisante pour une croissance ultérieure ; ainsi, de proche en proche, s'introduiraient les pertes de comptage dont la valeur est d'autant plus importante que le rayon initial est faible.

En conclusion, dans ce chapitre et les deux précédents, des résultats préliminaires nous ont permis de faire quelques critiques sur les différentes méthodes utilisées pour l'étude granulométrique d'aérosols. Après avoir amélioré la méthode de MAIGNE par suppression des oscillations en fin de spectre, nous avons présenté une nouvelle méthode de détermination de la granulométrie d'un aérosol au moyen des batteries de diffusion.

Des anomalies sur la forme des distributions obtenues nous ont conduit d'une part au calcul théorique des pertes de particules par diffusion-coagulation dans notre appareillage, et d'autre part aux pertes de comptage du CNC.



La réalité de ces pertes de comptage, qui dépendent comme nous l'avons montré de la taille et de la nature des particules d'aérosol, a été confirmée par un contrôle théorique et expérimental du générateur d'aérosols utilisé, puis par l'étude de la réponse du CNC GE en fonction de sa détente.

En tenant compte de ces insuffisances de comptage du CNC, nous introduirons au chapitre suivant une correction dans les granulométries obtenues en utilisant ce compteur dans différents sites de mesure.

## CHAPITRE VI

### RESULTATS ET INTERPRETATION

Dans ce chapitre, les données des batteries sont traitées uniquement par la nouvelle méthode d'intégration. Après avoir présenté la stratégie de la correction des résultats en fonction des pertes de comptage, nous donnerons les granulométries obtenues dans différents sites de pollution au moyen des batteries de diffusion et du compteur électrique. Nous indiquerons ensuite les résultats d'étude d'aérosols de combustion.

#### 1. CORRECTION DES RESULTATS.

##### 1.1. Principe de la correction.

Nous avons déjà indiqué dans un rapport interne (1) le principe et les résultats de cette correction que MAIGNE (65) a également introduite dans ses résultats. Nous avons vu ci-dessus (Fig. V-6) que les pertes de comptage dépendaient du diamètre des noyaux. Si  $n_a^i$  et  $n_c^i$  représentent respectivement la concentration réelle de l'aérosol et celle donnée par le CNC, le rapport :

$$p_i = \frac{n_c^i}{n_a^i}$$

est une fonction  $\phi(r_i)$  du rayon  $r_i$  des particules (ou de leur coefficient de diffusion  $D$ ) :

$$\frac{n_i^c}{n_a^i} = \phi(r_i)$$

Les traitements numériques sont effectués à partir des rapports  $n/n_0$ , des concentrations obtenues en aval et en amont des batteries de diffusion par le compteur de noyaux de condensation. Ces traitements sont d'autre part basés sur l'équation :

$$\frac{n}{n_0} = \int_{r_1}^{r_{\max}} f(r) \rho(r, Q) dr \quad (\text{VI-1})$$

où  $f(r)$  est la fonction de distribution de l'aérosol,  $r_1$  et  $r_{\max}$  étant respectivement les rayons des plus fines et des plus grosses particules contenues dans cet aérosol.

Si le CNC présente un défaut de comptage, la fonction  $f(r)$  déterminée à partir de l'équation (VI-1) ne représente pas la distribution réelle. Cette équation donne la "densité" apparente  $\psi(r)$  (65) des particules dans l'intervalle  $(r, r + dr)$  :

$$\psi(r) = \frac{d(n_i/n_0)}{dr}$$

$$\psi(r) = f(r) \rho(r, Q) \quad (\text{VI-2})$$

Si  $\psi_a(r)$  est la "densité" réelle, on a (56) :

$$\psi(r) = \phi(r) \psi_a(r)$$

et  $\psi_a(r)$  s'obtient par la transformation inverse  $\phi^{-1}(r)$  :

$$\psi_a(r) = \phi^{-1}(r) \psi(r) \quad (\text{VI-3})$$

La valeur corrigée de la "densité" de particules dans l'intervalle  $(r, r + dr)$  est alors :

$$\frac{dn_a}{dr} = n_0 \phi^{-1}(r) f(r) \rho(r, Q)$$

On aura donc les concentrations :

$$n = n_0 \int_{r_1}^{r_{\max}} \phi(r) \psi_a(r) dr$$

d'où

$$n_a = n_0 \int_{r_1}^{r_{\max}} \phi^{-1}(r) f(r) \rho(r, Q) dr \quad (\text{VI-4})$$

L'équation VI-4 définit la concentration réelle de l'aérosol à la sortie de la batterie de diffusion, au débit  $Q$ .

La fonction de distribution apparente  $f(r)$  est donc remplacée par le produit  $\phi^{-1}(r) f(r)$  qui représente la fonction de distribution réelle.

Pratiquement, la distribution étant supposée log-normale, on détermine  $dn/d \text{Log } r$  à partir de l'équation VI-1 par approximation numérique (chapitre IV). On déduit ensuite de l'équation VI-4 la valeur corrigée  $dn_a/d \text{Log } r$  correspondante. Le domaine  $(r_1, r_{\max})$  est divisé en  $N$  classes de rayon moyen  $\bar{r}_i/i = 1, N$ . On aura donc dans chaque intervalle :

$$\left(\frac{\Delta n_a}{\Delta \text{Log } r}\right)_i = \phi^{-1}(\bar{r}_i) \frac{\Delta n_i}{\Delta \text{Log } r} \quad (\text{VI-5})$$

avec :

$$\Delta \text{Log } r = \text{Log } r_{i+1} - \text{Log } r_i$$

L'intégration de l'équation VI-1 donne d'autre part la fonction de répartition  $F(r)$ , d'où la concentration  $n_r$  des particules de rayon inférieur ou égal à  $r$  :

$$n_r = n_0 F(r)$$

Pour  $r = r_{\max}$ ,  $n_r = n_0$ . On déduit des  $n_r$  les valeurs des concentrations  $n_i$  dans les différentes classes :

$$\Delta n_i = n_{r_{i+1}} - n_{r_i}$$

d'où les "densités" dans chaque intervalle de largeur  $\Delta r$  et de rayon moyen  $\bar{r}_i$  :

$$\frac{\Delta n}{\Delta r} = \frac{n_{r_{i+1}} - n_{r_i}}{\Delta r}$$

Les valeurs corrigées correspondantes sont alors :

$$(\Delta n_a)_i = \phi^{-1}(\bar{r}_i) \Delta n_i \quad (\text{VI-6})$$

$$(n_a)_{r_j} = \sum_{i=1}^j (\Delta n_a)_i$$

$$n_{\circ a} = \sum_{i=1}^N (\Delta n_a)_i \quad (\text{VI-7})$$

$$\left(\frac{\Delta n_a}{\Delta r}\right)_i = \phi^{-1}(\bar{r}_i) \frac{\Delta n_i}{\Delta r} \quad (\text{VI-8})$$

Les différents  $\phi(r)$  sont donnés par la figure V-6. La fonction de répartition corrigée  $F_a(r)$  se déduit alors de  $n_a$  et  $n_{\circ a}$ .

### 1.2. Exemples de correction.

Les tableaux VI-1 montrent des exemples de données dont le traitement est effectué avec une précision suffisante.

Le tableau VI-1-a conduit aux résultats du tableau VI-2, que nous avons représentés sur la figure VI-1-a ; on constate que :

1°) Les positions relatives des deux maxima sur la courbe corrigée sont bien celles auxquelles on peut s'attendre dans le cas de production importante de fines particules.

TABLEAU VI-1  
EXEMPLES DE DONNEES

DEBIT (l/min)	N/NO EXP	N/NO TH	ECART EN %	CARACTERISTIQUES DE LA DISTRIBUTION
10.00	0.08000	0.07918	1.02214	$r_1 = 3 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$
20.00	0.12000	0.12314	-2.61724	
30.00	0.15000	0.15072	-0.48153	$\sigma_1 = 1.08$
40.00	0.17000	0.17024	-0.14151	
50.00	0.18700	0.18527	0.92327	$A_1 = 0.89$
60.00	0.20000	0.19760	1.20062	
80.00	0.22000	0.21751	1.13075	
100.00	0.23500	0.23367	0.56652	$r_2 = 6.7 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$
140.00	0.25600	0.25944	-1.34364	
200.00	0.28500	0.28814	-1.10097	$\sigma_2 = 1$
250.00	0.30500	0.30642	-0.46638	$A_2 = 0.11$

b) Grosses particules (2/07/76 12 h)

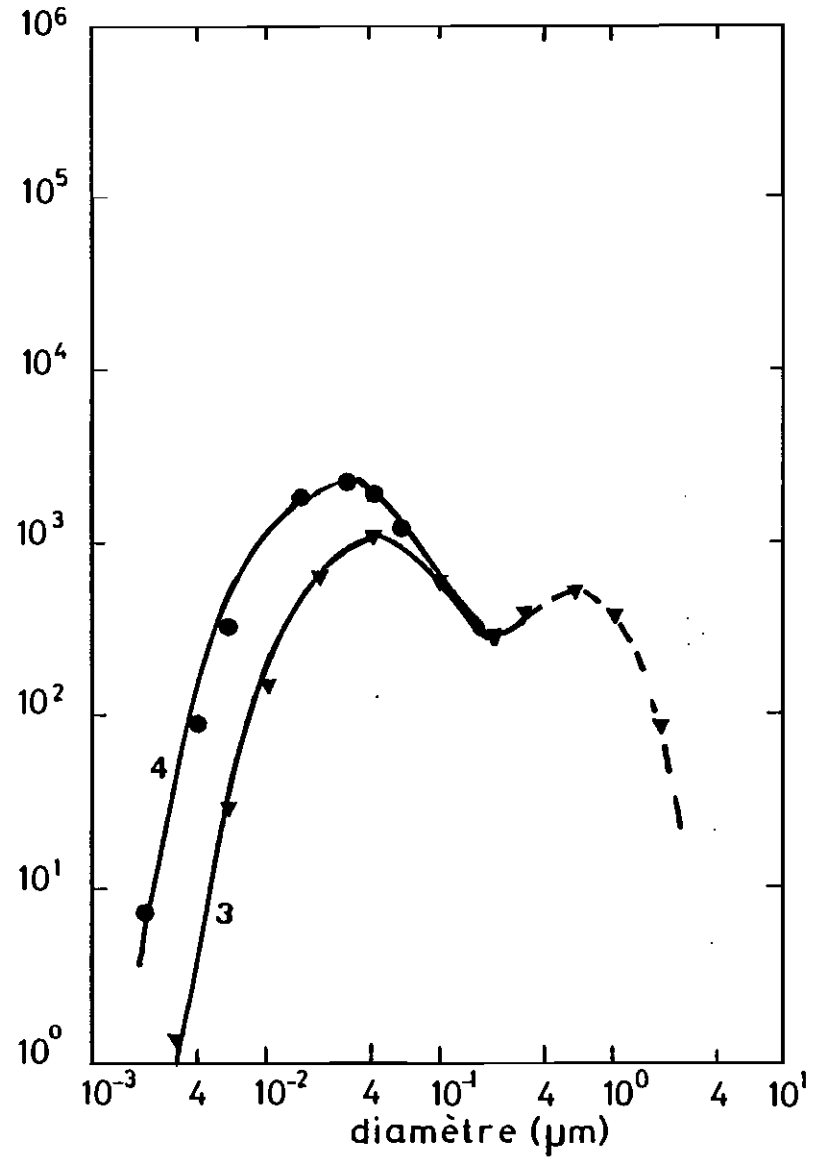
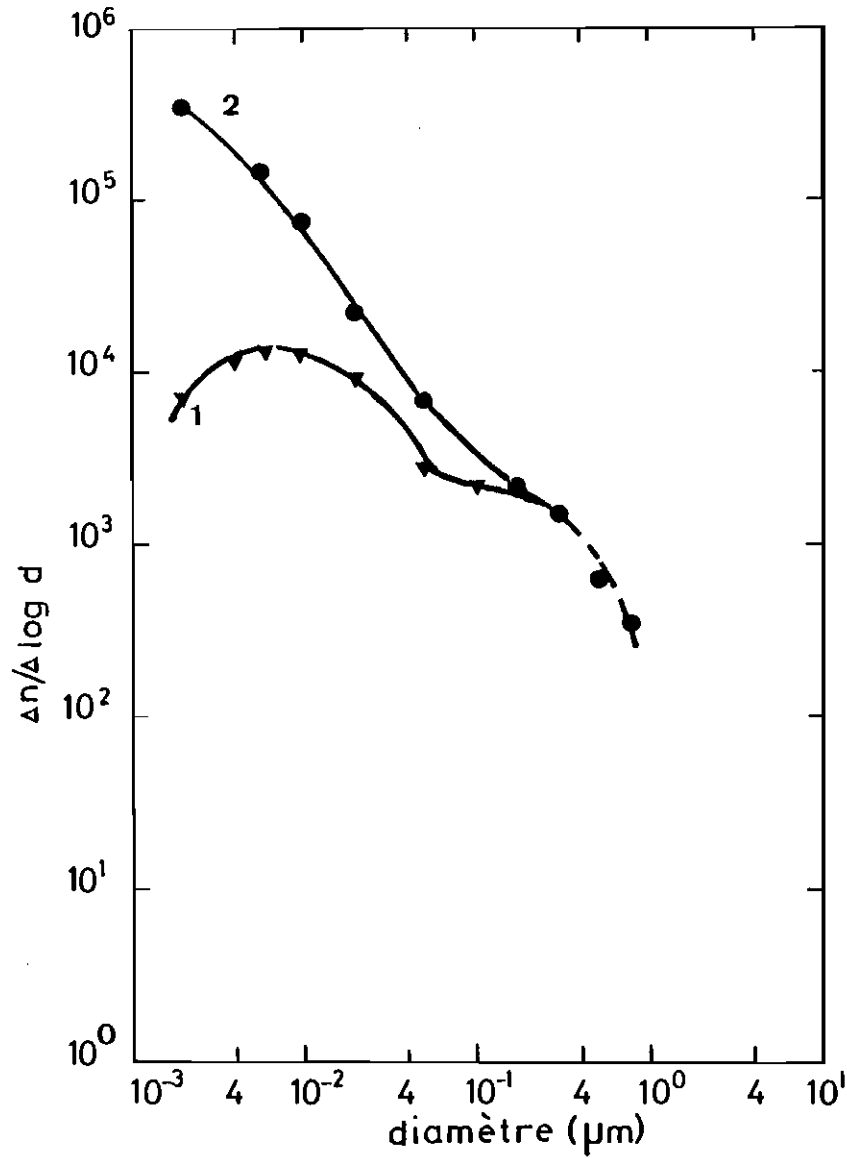
DEBIT (l/min)	N/NO EXP	N/NO TH	ECART EN %	CARACTERISTIQUES DE LA DISTRIBUTION
1.70	0.48913	0.48321	1.20996	$r_1 = 2 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$
3.30	0.63529	0.62416	1.75148	
5.20	0.70270	0.70522	0.35836	$\sigma_1 = 0.95$
6.70	0.72619	0.74407	2.46222	
8.00	0.77000	0.76860	0.18153	$A_1 = 0.01$
10.00	0.79670	0.79650	0.02503	
12.00	0.82100	0.82128	0.03421	
15.00	0.84110	0.84244	0.15933	
18.00	0.86000	0.85569	0.50109	$r_2 = 2.5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$
19.00	0.86500	0.86106	0.45523	
21.00	0.87500	0.87070	0.49096	$\sigma_2 = 1.3$
25.00	0.88700	0.88101	0.67547	
28.00	0.90000	0.88864	1.26174	$A_2 = 0.99$
34.00	0.91500	0.90055	1.57911	
40.00	0.92700	0.90947	1.89098	
50.00	0.94400	0.92032	2.50841	
60.00	0.95500	0.92811	2.81560	

TABLEAU VI-2

CORRECTION DES RESULTATS

DIAMETRES en $\mu\text{m}$	DN/DLOGR	DN/DLOGR CORRIGE	N	N CORRIGE	F	F <sub>a</sub> (CORRIGE)
0.002	7947.32	397365.81	6034.1	301706.6	0.148	0.497
0.004	11891.25	198187.50	13031.1	449654.3	0.320	0.742
0.006	12678.61	140873.44	18063.2	511634.8	0.444	0.844
0.008	12296.81	102473.44	21674.3	541726.6	0.533	0.893
0.010	11506.92	76712.75	24337.3	559480.0	0.598	0.923
0.020	7521.56	24263.09	31003.9	588357.1	0.762	0.970
0.032	4931.66	10274.29	33901.3	595455.8	0.833	0.982
0.040	4019.21	6929.66	34895.6	597170.0	0.857	0.985
0.060	2943.11	3977.17	36263.4	599160.6	0.891	0.988
0.080	2536.68	3170.85	37066.2	600153.1	0.911	0.989
0.100	2337.71	2816.52	37608.8	600811.1	0.924	0.991
0.200	1804.13	1952.56	39053.3	602467.6	0.959	0.993
0.400	1037.99	1037.99	40046.4	603494.7	0.984	0.995
0.600	615.52	615.52	40378.5	603826.7	0.992	0.996
0.800	386.13	386.13	40521.0	603969.1	0.996	0.996





▼ non corrigé  
 ● corrigé ( - - - extrapolations)  
 a) Guisseny no=40 700

▼ non corrigé  
 ● corrige  
 b) Guisseny no=3 300

Fig. VI-1: CORRECTION de COMPTAGE

2°) Après correction, le mode des noyaux de faibles dimensions se déplace de  $d = 8 \cdot 10^{-7}$  cm à  $d = 2 \cdot 10^{-7}$  cm ; ce qui est conforme à la situation atmosphérique qui prévaut à Guisseny au moment où ces mesures ont été effectuées (production de particules ultra-fines par le champ d'algues). La valeur  $2 \cdot 10^{-7}$  cm du diamètre modal des fines particules est voisine du diamètre apparent ( $2.6 \cdot 10^{-7}$  cm) que nous avons obtenu directement, à partir des équations de GORMELEY et KENNEDY et des concentrations  $n_0$  et  $n$  de l'aérosol en amont et en aval d'une batterie cylindrique, dans le cas de fortes productions ( $n_c \geq 500\ 000/\text{cc}$ ).

3°) La concentration totale  $n_0$  de l'aérosol qui était de 40 700 particules par  $\text{cm}^3$  passe, après correction, à 600 000 particules par  $\text{cm}^3$ . La différence entre  $n_0$  et sa valeur corrigée peut être plus importante que ci-dessus si l'aérosol contient davantage de fines particules.

Par contre, pour un aérosol contenant une forte proportion de grosses particules (tableau VI-1-b) la concentration ( $n_0$ ) corrigée est peu différente de  $n_0$ . Le tableau VI-3 donne en effet :

$$n_0 = 8\ 500$$

$$(n_0)_{\text{corrigé}} = 27\ 200$$

Après la correction, le déplacement du second mode vers les fines particules peut être moins marqué comme on

TABLEAU VI-3

CORRECTION DES RESULTATS (grosses particules)

DIAMETRES en m	DN/DLOGR	DN/DLOGR CORRIGE	N	N CORRIGE	F	F <sub>a</sub> (CORRIGE)
0.002	283.75	14189.59	201.7	10086.7	0.02241	0.352
0.004	380.52	6342.01	440.5	15163.5	0.04895	0.529
0.006	357.29	3969.89	592.1	17035.8	0.06579	0.594
0.008	312.27	2602.26	688.8	17841.4	0.07653	0.623
0.010	272.00	1813.33	753.9	18276.0	0.08377	0.638
0.020	213.24	687.86	912.6	18958.3	0.10140	0.662
0.032	306.44	638.42	1029.3	19237.9	0.11437	0.671
0.040	402.15	693.35	1107.7	19373.1	0.12308	0.676
0.060	667.70	902.29	1320.6	19675.4	0.14674	0.685
0.080	924.47	1155.59	1548.4	19663.8	0.17205	0.597
0.100	1155.40	1392.05	1780.0	20244.5	0.19778	0.706
0.200	1928.07	2118.76	2850.4	21464.0	0.31671	0.749
0.400	2432.68	2432.68	4390.6	23049.4	0.48784	0.800
0.600	2447.09	2447.09	5387.8	24046.6	0.59865	0.839
0.800	2318.33	2318.33	6075.9	24734.7	0.67510	0.863
1.0	2150.34	2150.94	6575.4	25234.2	0.73060	0.880
2.0	1414.05	1414.05	7821.8	26480.6	0.86009	0.924
4.0	702.32	702.32	8543.3	27202.1	0.94926	0.949

le voit sur la Figure VI-1-b où ce mode passe de  $4 \cdot 10^{-6}$  à  $3 \cdot 10^{-6}$  cm. Dans ce cas, la correction conserve par ailleurs la forme de la courbe.

La Figure VI-2 montre que, pour les grosses particules, le mode obtenu au moyen des batteries de diffusion est peu différent de celui obtenu par l'analyseur électrique d'aérosol. Par contre, celui-ci ne permet pas d'accéder aux fines particules dans le voisinage de  $2 \cdot 10^{-7}$  cm.

La correction des résultats peut aussi permettre la mise en évidence d'un maximum qui n'apparaît pas dans les spectres non corrigés. La figure VI-3 donne un exemple de distribution apparemment unimodale (courbe 1) ; après correction, on obtient une granulométrie bimodale (courbe 2), ce qui se comprend bien puisque les pertes sont d'autant plus importantes que le rayon est petit.

Dans les tableaux VI-2 et VI-3 sont également portées les fonctions de répartition (ou pourcentages cumulés) corrigées ( $F_a$ ) et non corrigées ( $F$ ). Après correction, les modifications de  $F$  peuvent être importantes ; ainsi, le tableau VI-2 montre que, avec les valeurs initiales de  $F$ , 59 % de particules ont des dimensions inférieures à  $10^{-6}$  cm, alors qu'en considérant les valeurs modifiées  $F_a$ , on trouve 92 % de ces noyaux au-dessous de  $10^{-6}$  cm. Ceci est également illustré par la figure VI-4 où nous avons porté  $F$  et  $F_a$  en fonction du diamètre des particules. La courbe 2 représentative de  $F$  est constituée par deux droites de HENRY pratiquement dans le prolongement l'une de l'autre, ce qui signifie

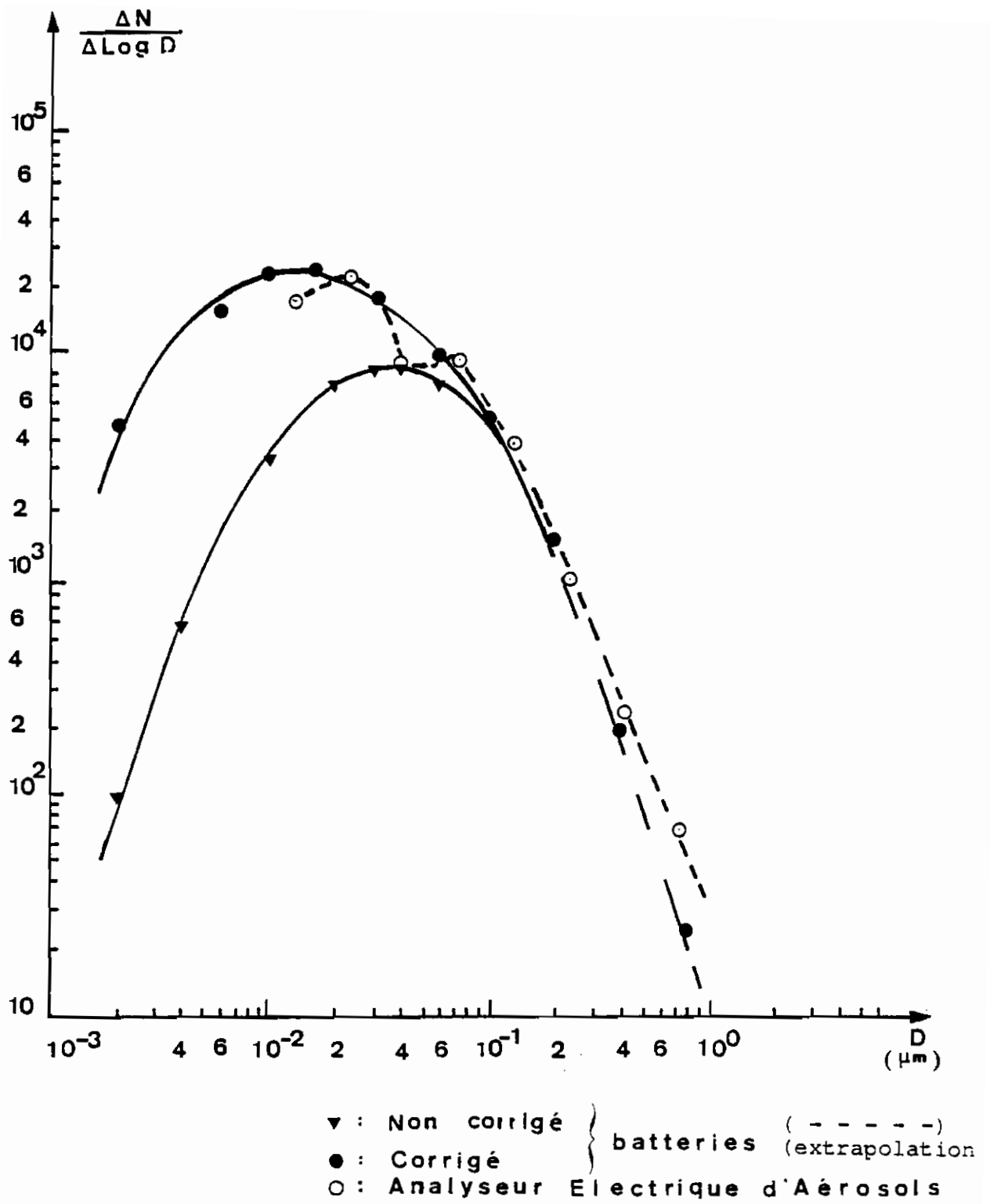
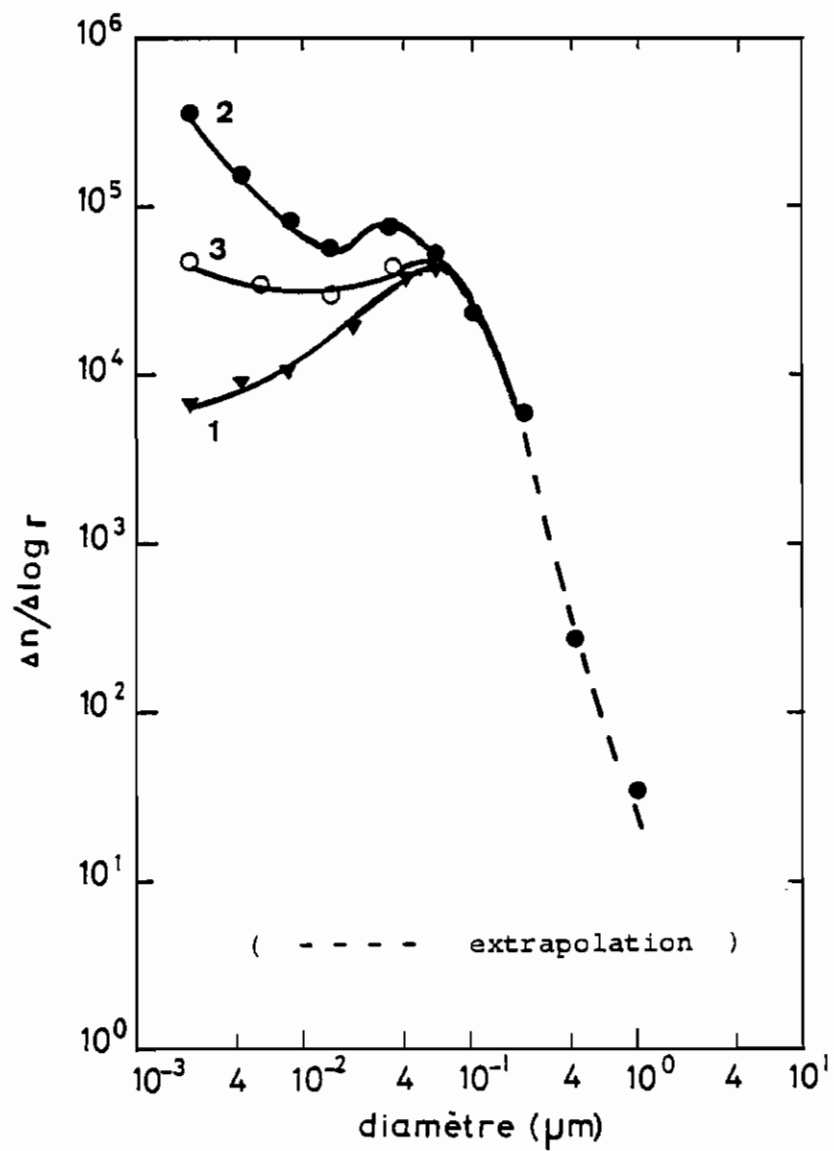


Fig. VI-2 : Correction de comptage



- ▼ non corrigé
- corrigé
- correction moyenne

Fig. VI-3 : CORRECTION des RESULTATS

(Paris  $n_0=88000$  APPARITION d'un maximum secondaire)

que la distribution semble pratiquement unimodale. En plus de la proportion des fines particules, la bimodalité est accentuée dans la fonction  $F_a$  (courbe 1 où les deux droites de HENRY sont bien distinctes). Les pourcentages cumulés peuvent être moins modifiés par la correction que ci-dessus, si l'aérosol contient effectivement une forte proportion de grosses particules. La figure VI-1-b ci-dessus est un exemple où le traitement direct des données indique 1 % de noyaux de diamètre inférieur à  $10^{-6}$  cm et 94 % au-dessus d'un diamètre égal à  $1.6 \cdot 10^{-5}$  cm ; la correction fait passer ces pourcentages respectivement à 7 % et 81 %, sans que la bimodalité soit pour autant modifiée, comme l'indiquent sur la figure VI-1 les courbes 3 et 4.

Ces corrections doivent cependant être interprétées avec une certaine prudence. Nous avons vu en effet que les pertes de comptage dépendaient de la nature des particules. Les corrections que nous venons d'effectuer sont basées sur les pertes pour un aérosol de chlorure de sodium ; or nous avons vu au chapitre V que, dans le cas d'un aérosol métallique, ces pertes sont moins importantes. Si nous effectuons une correction à l'aide de la moyenne de ces deux séries de pertes de comptage (courbe 3 de la figure VI-3), la modification de la distribution initiale est moins importante. En particulier, dans le cas présent, l'apparition de la bimodalité est moins nette.

Nous admettrons, cependant, que l'aérosol étudié contient une forte proportion de particules relativement hygros-

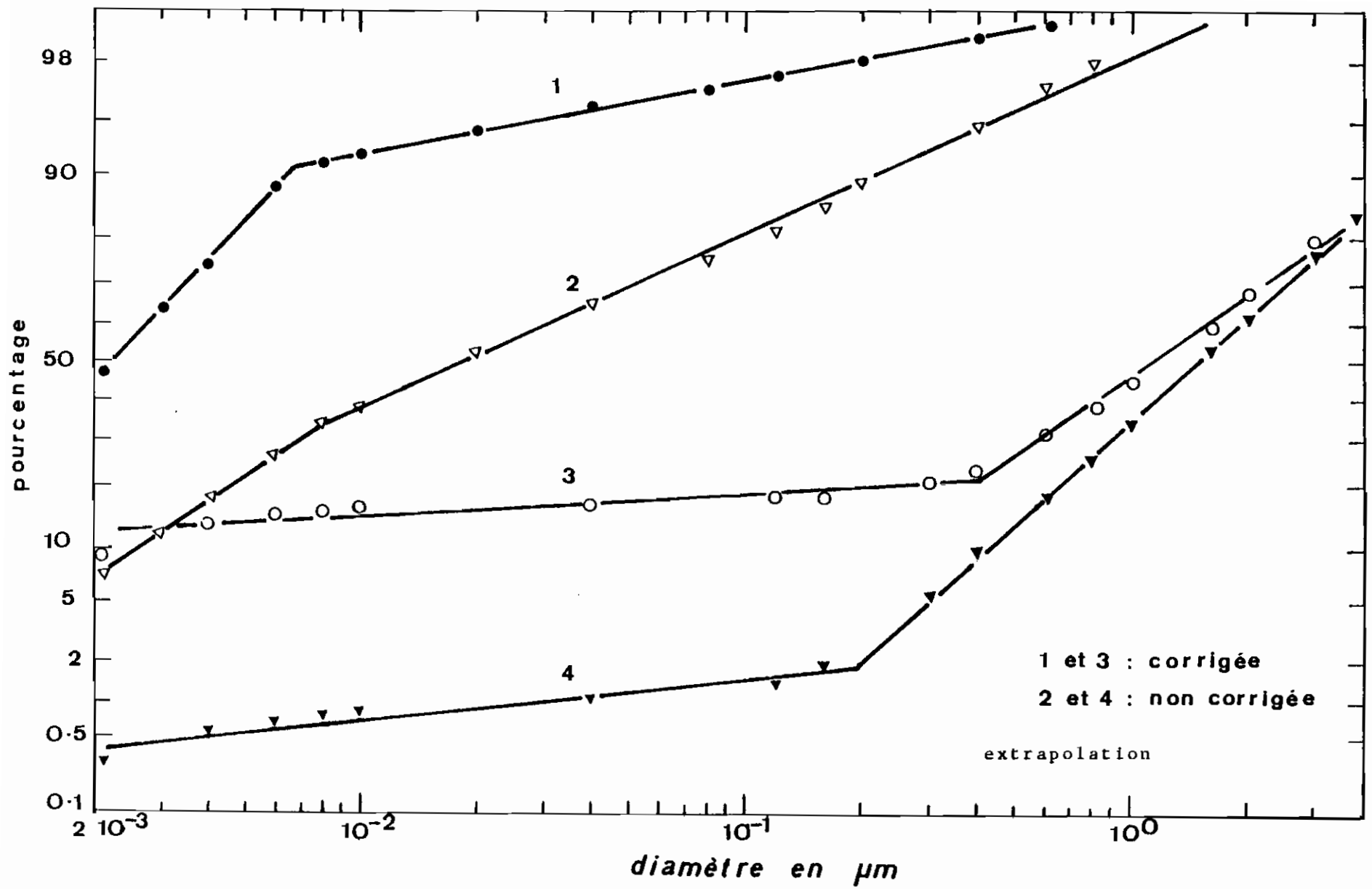


Fig. VI-4 : FONCTION DE REPARTITION



copiques et qui conduisent à des pertes de comptage comparables à celles du chlorure de sodium. Tous les résultats seront alors corrigés à partir des fonctions  $\phi(r)$  de la figure V-4.

Notons enfin que, au-dessus de  $0.2 \mu\text{m}$ , nos granulométries ne sont que des extrapolations peu précises puisque dans les traitements numériques nous ne tenons pas compte de l'effet de gravité qui augmente avec le diamètre des particules.

## 2. RESULTATS.

Nous présentons maintenant quelques résultats obtenus dans les différents sites de mesure. Nous parlerons successivement des mesures effectuées à Paris, à Guyancourt, à Brest et à Guisseny avec les batteries de diffusion et le compteur électrique. Le tableau VI-4 donne les caractéristiques des granulométries obtenues au moyen des batteries.

### 2.1. Résultats à Paris.

#### 2.1.1. avec les batteries de diffusion.

La figure VI-5 représente les granulométries d'aérosols parisiens. Les caractéristiques de ces granulométries sont données dans le tableau VI-4-a. Presque toutes les distributions sont bimodales, avec un premier maximum (celui des grosses particules) situé à un diamètre  $d$  compris entre

TABLEAU VI-4 : CARACTERISTIQUES DES DISTRIBUTIONS

a) Paris

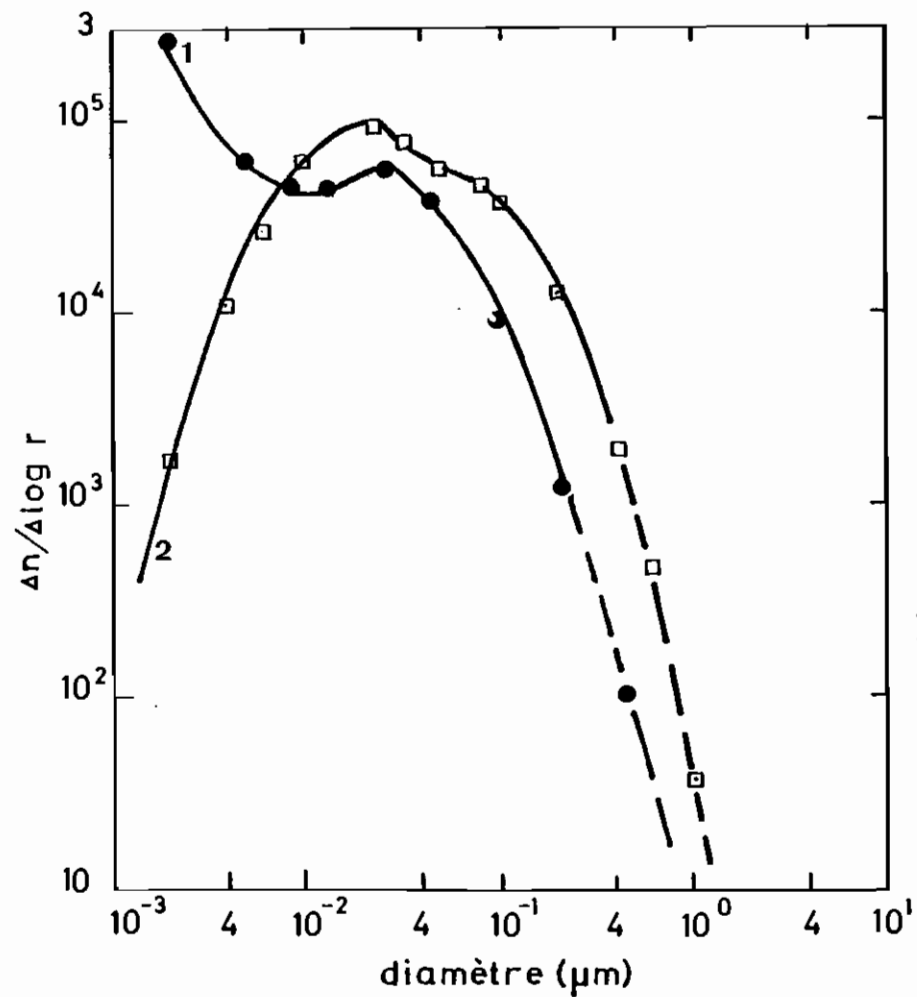
Date	heure	$r_1 (10^{-6} \text{cm})$	$r_2 (10^{-6} \text{cm})$	$\sigma_1$	$\sigma_2$	$A_1$	$A_2$	F
15/06/75	8H56	0.34	2.4	1.49	0.58	0.40	0.60	1
20/06/75	18H18	1.9	5	0.79	0.68	0.80	0.20	1
23/06/75	11H30	1	3	1.23	0.35	0.54	0.46	1
23/09/75	11H50	2.7	5.3	0.81	0.96	0.87	0.13	1

b) Guyancourt

Date	heure	$r_1 (10^{-6} \text{cm})$	$r_2 (10^{-6} \text{cm})$	$\sigma_1$	$\sigma_2$	$A_1$	$A_2$	F	
31/10/75	11 H	0.2	1.6	0.86	0.77	0.37	0.63	1	
2/11/75	13 H	0.26	1.8	1.05	0.43	0.42	0.58	1	
15/06/76	5 H30	1	1.9	1.02	1.40	0.39	0.61	1	
"	"	8 H10	0.84	1.8	1.07	1.20	0.21	0.79	0.996

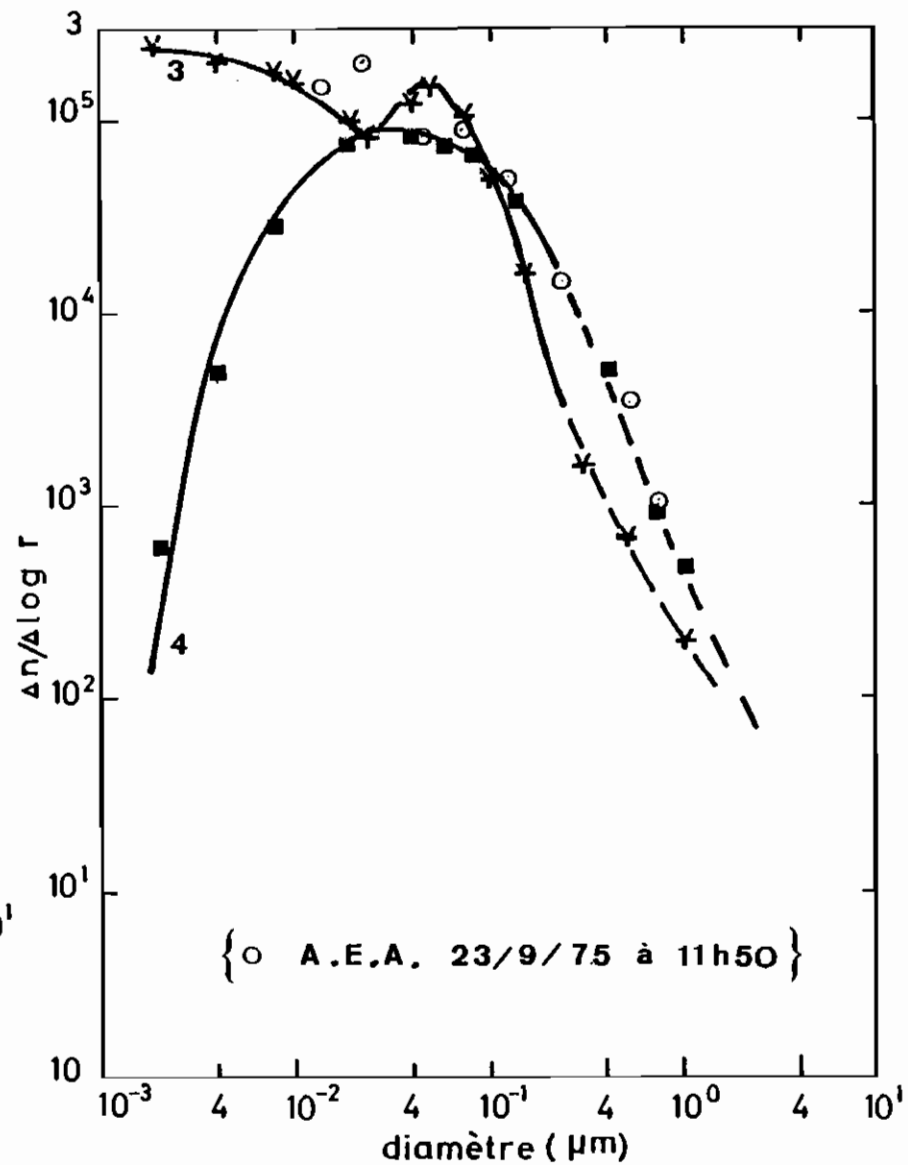
c) Guisseny

Date	Heure	$r_1 (10^{-6} \text{cm})$	$r_2 (10^{-6} \text{cm})$	$\sigma_1$	$\sigma_2$	$A_1$	$A_2$	F
27/06/76	12H	2.2	5.6	1.24	0.83	0.09	0.91	1
30/06/76	9H19	3.7	13	1.97	2.88	0.29	0.71	0.92
"	"	10H04	0.57	0.95	1.01	0.04	0.96	0.996
"	"	18H27	0.26	0.78	0.83	0.07	0.93	1
01/07/76	13H19	0.36	7.4	0.97	1.20	0.13	0.87	0.987
02/07/76	12H	0.2	25	0.95	1.31	0.10	0.90	0.95
04/07/76	15H29	0.1	1	1.50	0.32	0.39	0.61	1
07/07/76	7H59	1.20	2.6	1.10	1.15	0.72	0.28	0.997
"	"	10H15	1.61	0.96	0.78	0.74	0.26	1
"	"	14H45	2	0.72	0.81	0.66	0.34	0.93
"	"	16H34	1.36	0.62	1.14	0.45	0.55	0.995



a) { ● 15/6/75 à 8h56 no=88 000  
 □ 20/6/75 à 18h18 no=97 000

( - - - - extrapolations )



b) { ■ 23/9/75 à 11h50 no=118 000  
 ✱ 23/6/75 à 11h30 no=165 000

Fig. VI-5: PARIS (batteries)

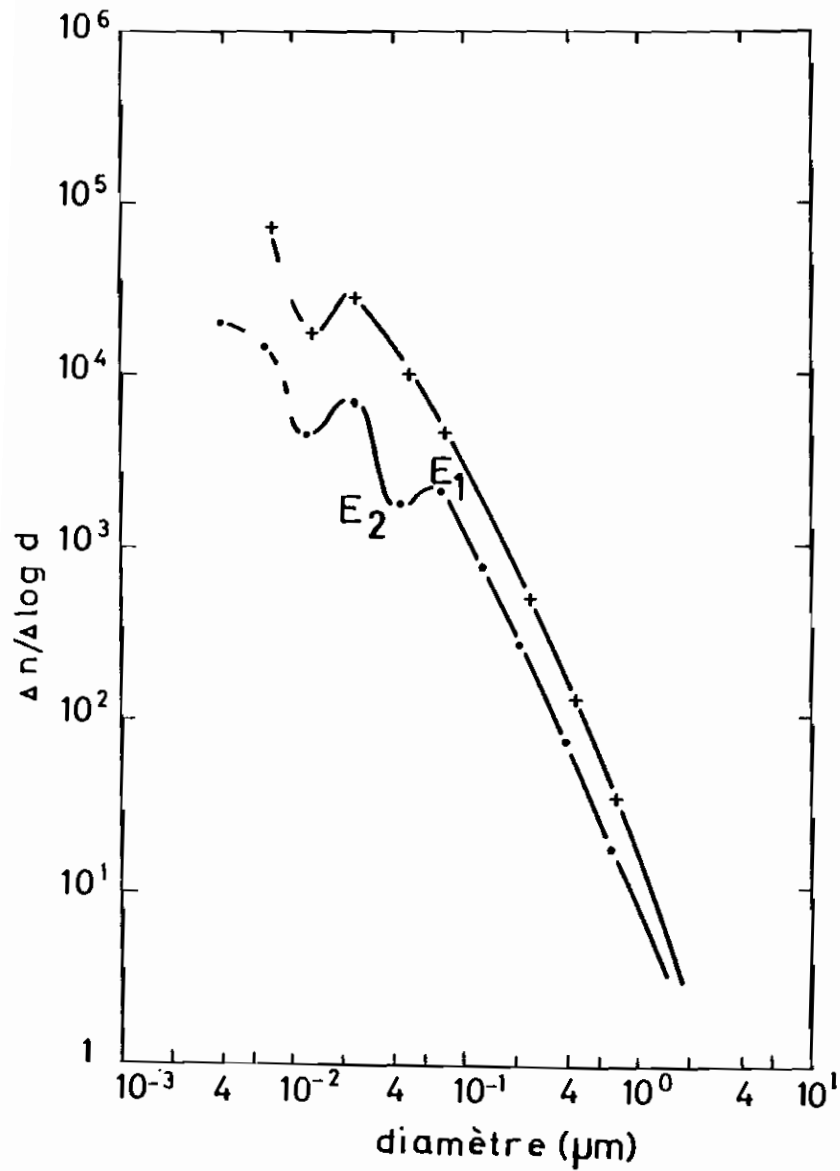
$2 \cdot 10^{-6}$  et  $10^{-5}$  cm. La courbe 1 indique le second maximum à  $d = 2 \cdot 10^{-7}$  cm, alors que les courbes 2 et 4 donnent ce second maximum à  $d = 2 \cdot 10^{-6}$  cm. Il y aurait, dans le premier cas, création de fines particules de  $10^{-6}$  cm de rayon par réaction photochimique juste avant les mesures. Dans le cas des courbes 2 et 4, ces réactions photochimiques n'ont pas lieu ou sont peu marquées : les études d'aérosols de "photolyse" (formés par réaction photochimique) effectuées en laboratoire sur l'air filtré nous ont en effet montré que le nombre de noyaux créés pouvait être inférieur à  $1\ 000/\text{cm}^3$ , ce qui peut être dû :

- soit à la faible quantité d'impuretés gazeuses activables ;
- soit à l'insuffisance de la photoactivation.

Mais, les mesures portées sur la figure VI-5 ayant été effectuées à des heures de circulation automobile importante, c'est la seconde hypothèse (insuffisance de la photoactivation) qui expliquerait le mode à  $d = 10^{-6}$  pour les courbes 2 et 4.

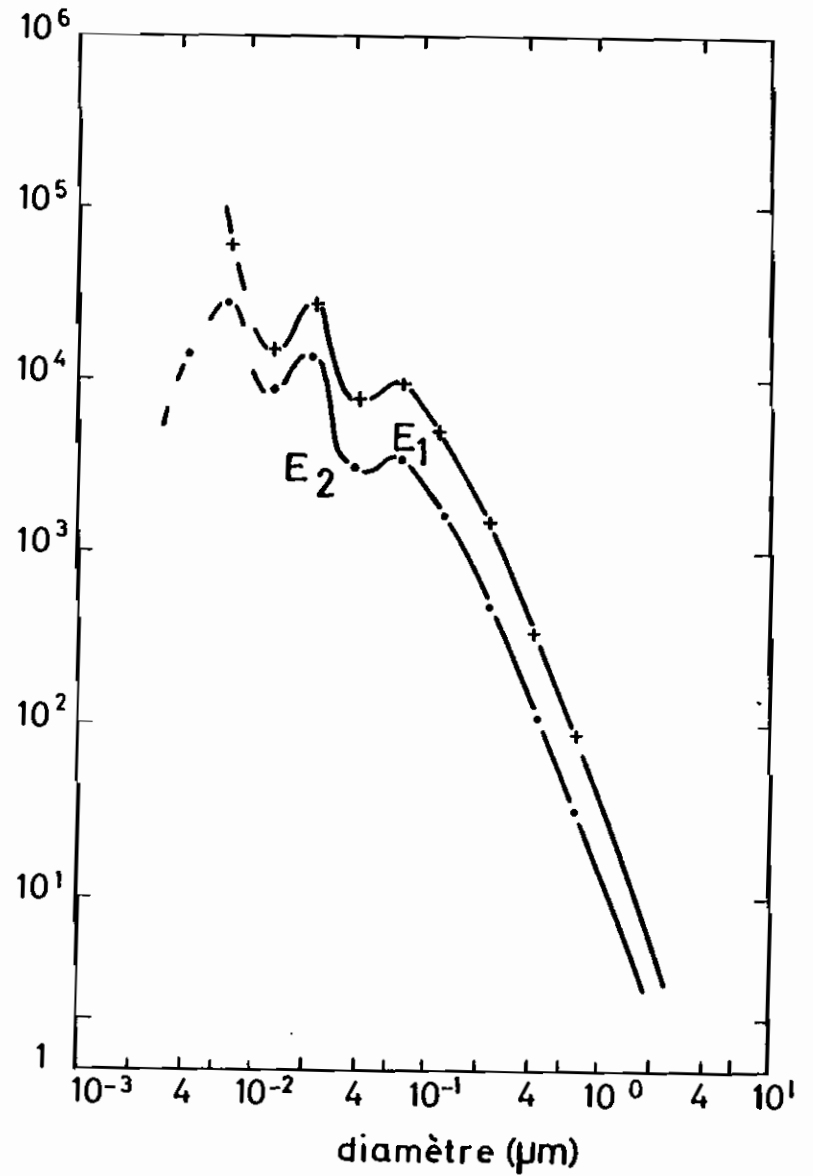
#### 2.1.2. avec l'analyseur électrique.

Des résultats obtenus à Paris au moyen du compteur électrique sont représentés sur la figure VI-6. Nous y avons porté en pointillé la partie des courbes correspondant à  $d < 10^{-6}$  cm, valeur au-dessous de laquelle les résultats du



15/09/75 { + 11 h 40  
 • 15 h 25

( - - - extrapolation )



23/09/75 { + 12 h 10  
 • 16 h 06

Fig. VI-6: PARIS (A E A)

compteur électrique sont peu fiables.

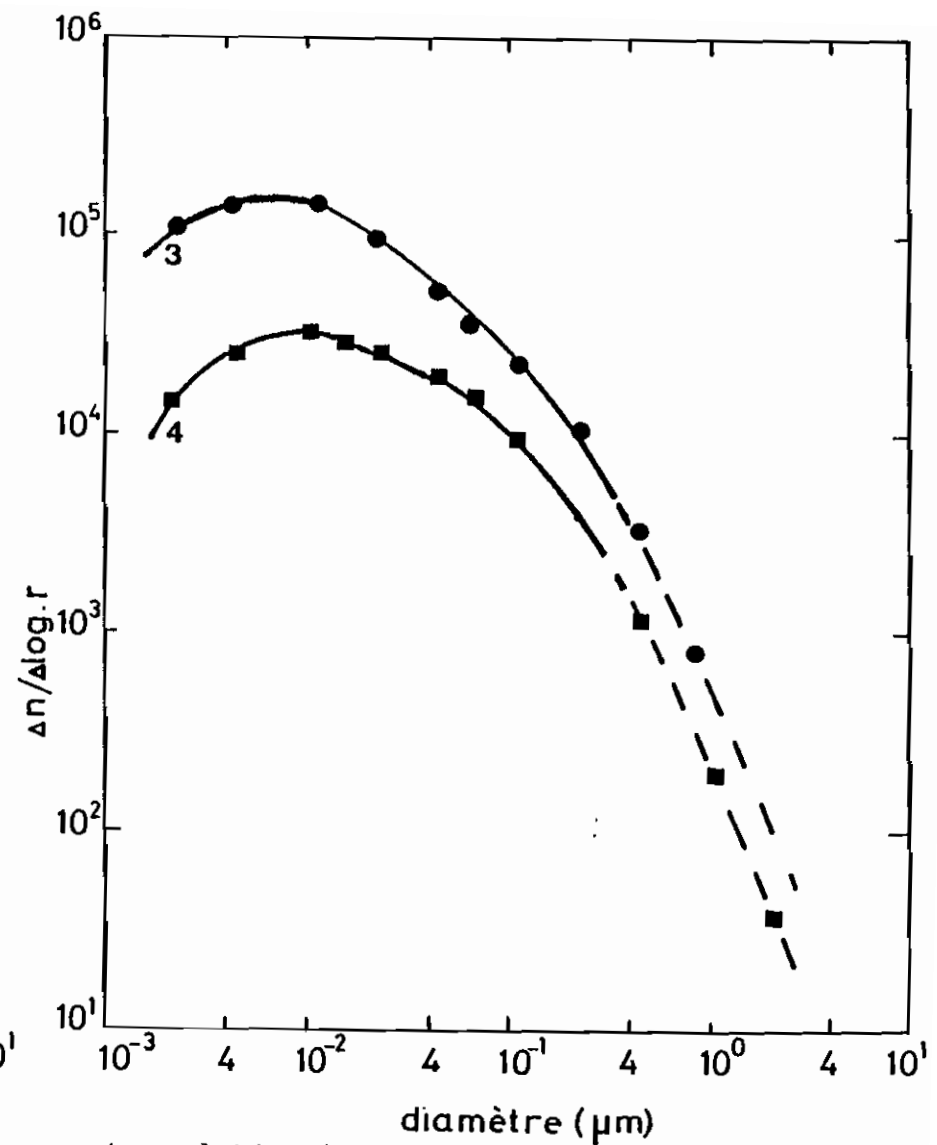
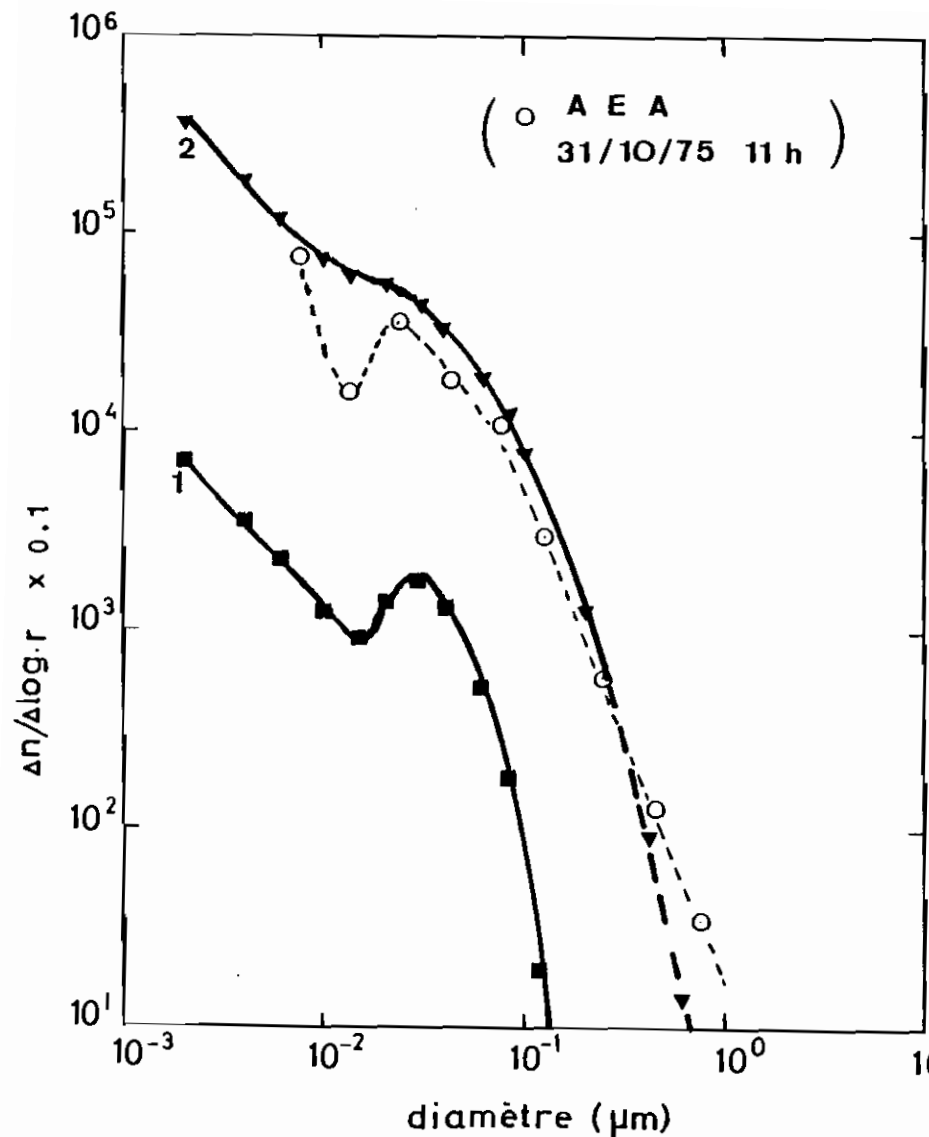
On remarque ici l'existence des maxima à  $d = 8 \cdot 10^{-6}$  cm et  $d = 2 \cdot 10^{-6}$  cm, la partie en pointillé laissant croire à l'existence d'un autre maximum dans l'intervalle de diamètre compris entre  $2 \cdot 10^{-7}$  cm et  $10^{-6}$  cm.

Nous avons vu cependant au chapitre III qu'il pouvait apparaître des bimodalités systématiques dans l'intervalle ( $10^{-6}$  cm,  $10^{-5}$  cm). Le test  $E_2/E_1$  (rapport des ordonnées du minimum à  $4 \cdot 10^{-6}$  cm et du premier maximum) donné au chapitre III étant positif ( $E_2/E_1 \leq 1$ ), le maximum situé à  $8 \cdot 10^{-6}$  cm a probablement une existence réelle. Le second maximum est situé vers  $10^{-6}$  cm.

## 2.2. Granulométries à Guyancourt.

### 2.2.1. Batteries de diffusion.

Le tableau VI-4-b donne les caractéristiques des granulométries obtenues avec les batteries de diffusion et qui sont représentées sur la Figure VI-7. Ici aussi, le premier maximum est situé à un diamètre  $d$  compris entre  $2 \cdot 10^{-6}$  cm et  $10^{-5}$  cm. Sur les courbes 1 et 2, le second mode est situé, comme souvent à Paris, à  $0.002 \mu\text{m}$ . La courbe 4, obtenue à l'aube, donne le maximum de fines particules à  $1.0 \cdot 10^{-6}$  cm. Avec la courbe 3 qui provient d'une mesure effectuée à 8 h, ce maximum de fines particules apparaît à  $6 \cdot 10^{-7}$  cm. Aux heures des expériences de la figure VI-7-b, le soleil n'est



a) {  $\blacksquare$  2 /11/75 à 13 h  $N_o = 14\,000$   
 $\blacktriangledown$  31/10/75 à 11 h 00  $N_o = 60\,000$

b) 15/06/76 {  $\blacksquare$  5 h 30  $N_o = 42\,000$   
 $\bullet$  8 h 10  $N_o = 99\,000$

Fig. VI-7: GUYANCOURT (batteries)

pas encore levé et le maximum des fines particules ne peut être attribué aux réactions photochimiques ; à 8 h, ce maximum correspond à des noyaux beaucoup plus fins ( $6 \cdot 10^{-7}$  cm) qu'à 5 h ( $1 \cdot 10^{-6}$  cm). Or, à 8 h précisément, la circulation automobile est beaucoup plus importante qu'à 5 h. Cette circulation automobile aurait donc pour effet la création d'aérosols fins. Nous y reviendrons au paragraphe 3 lors de l'étude d'un aérosol de combustion.

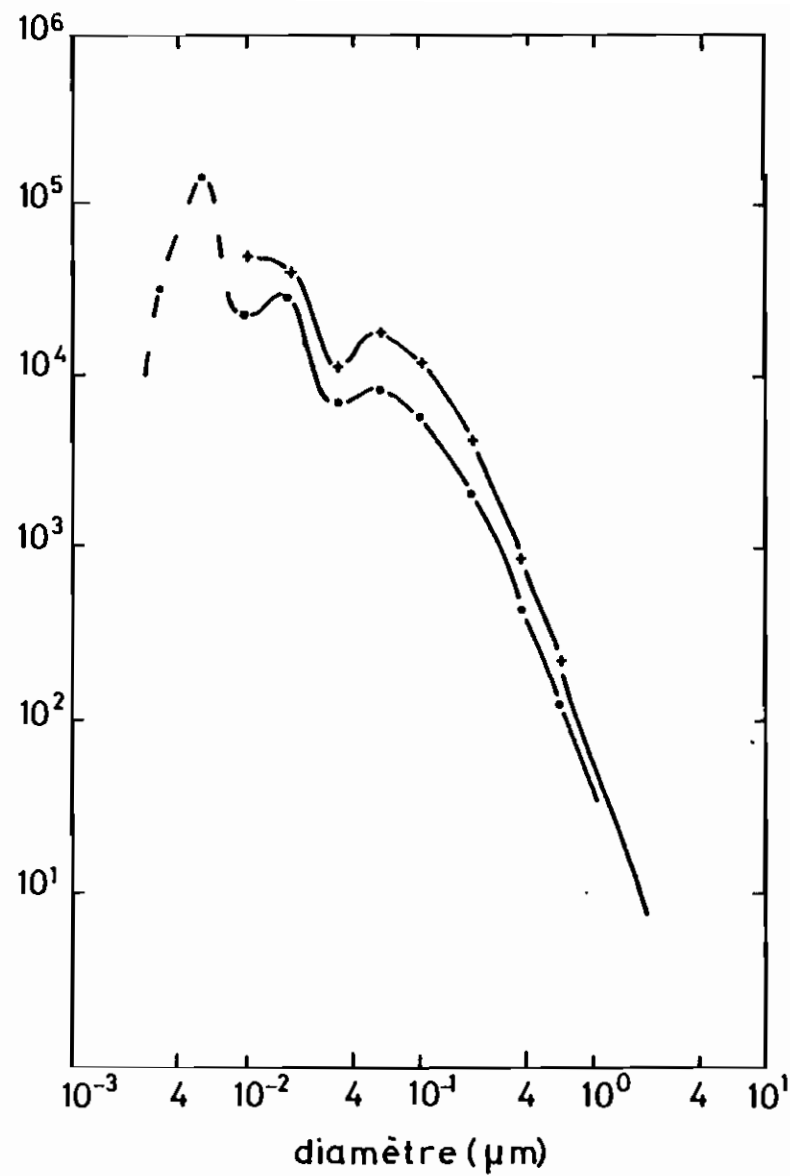
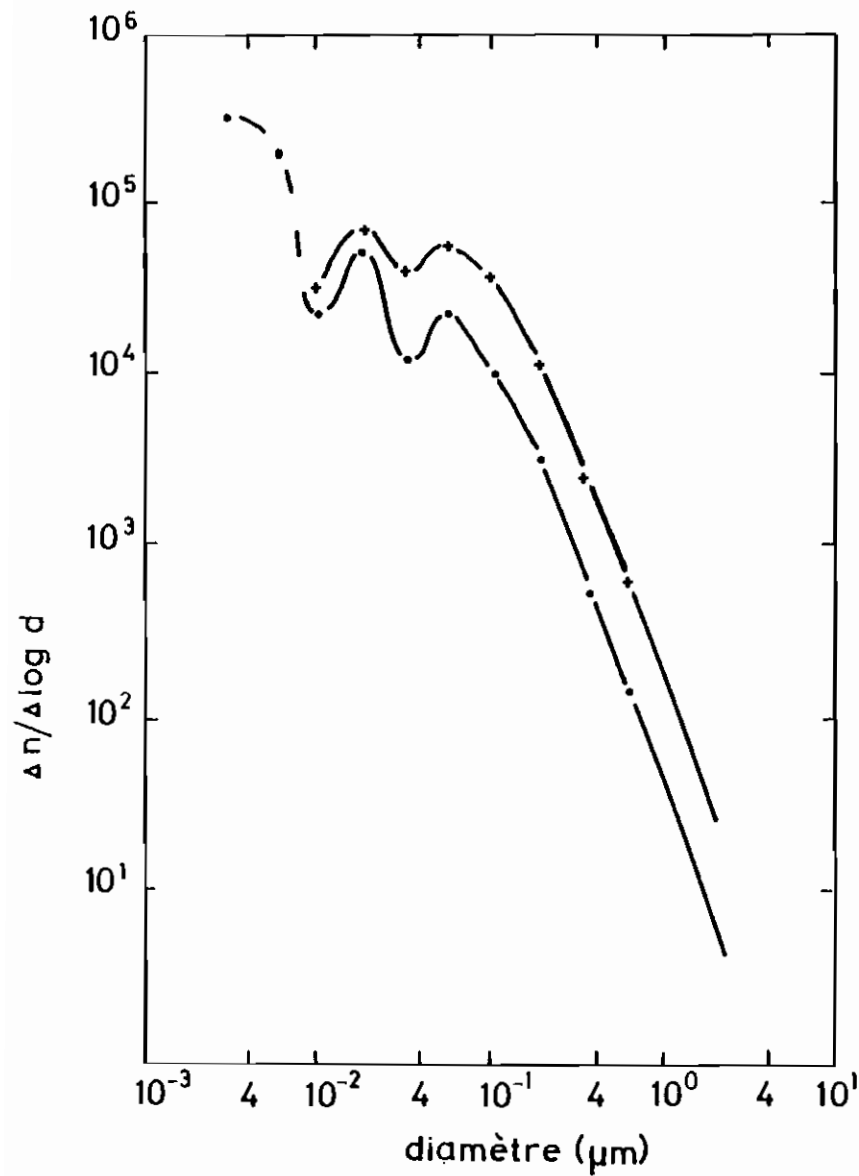
### 2.2.2. Résultats du compteur électrique.

Les granulométries obtenues ici (Fig. VI-8) sont du même type que celles que nous avons données ci-dessus pour Paris (un maximum à  $d = 8 \cdot 10^{-6}$  cm et un autre vers  $10^{-6}$  cm).

### 2.3. A Brest.

Ici, les mesures sont faites uniquement avec le compteur électrique. L'allure des courbes représentatives (Fig. VI-9) est la même qu'à Paris et à Guyancourt, mais les ordonnées sont plus faibles, à cause des moindres concentrations moyennes ( $8000 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$  au lieu de  $90\ 000 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$ ).





a { + 24/10/75 à 12 h 30 ( - - - extrapolation )  
 . 30/10/75 à 15 h 30

b { + 30/10/75 à 11 h 30  
 . 31/10/75 à 13 h

Fig. VI-8 : GUYANCOURT (A. E. A.)

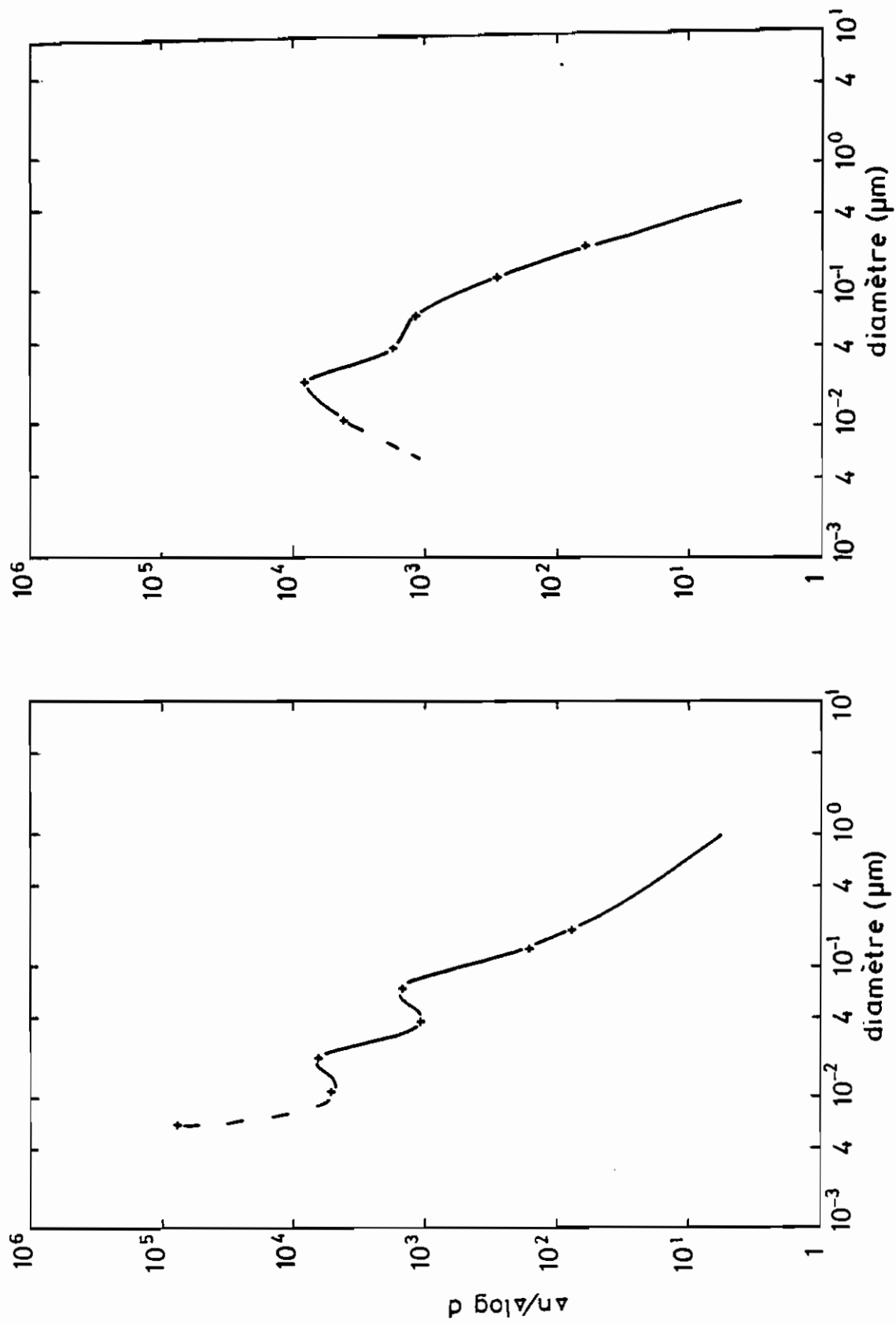


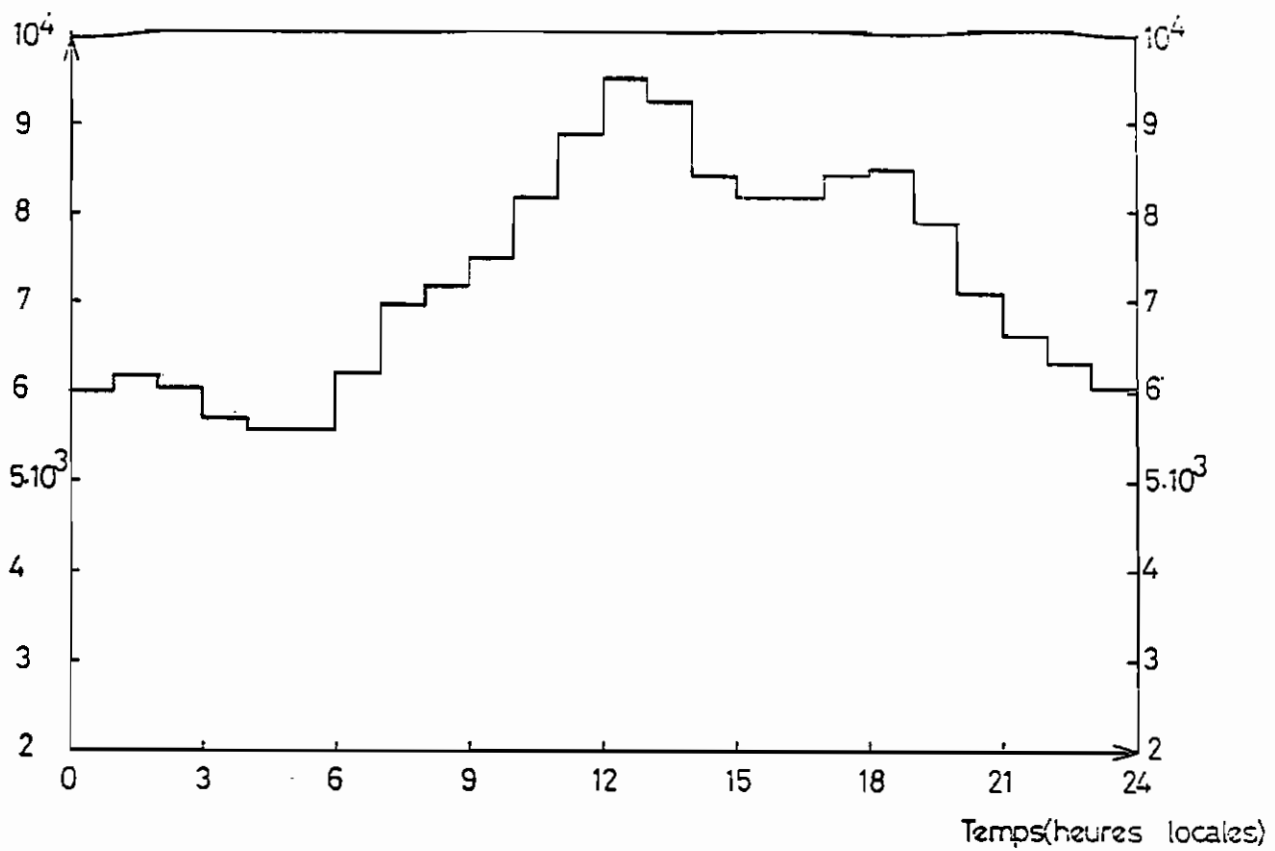
Fig. VI-9: RESULTATS de BREST 15/10/75

#### 2.4. Les mesures de Guisseny.

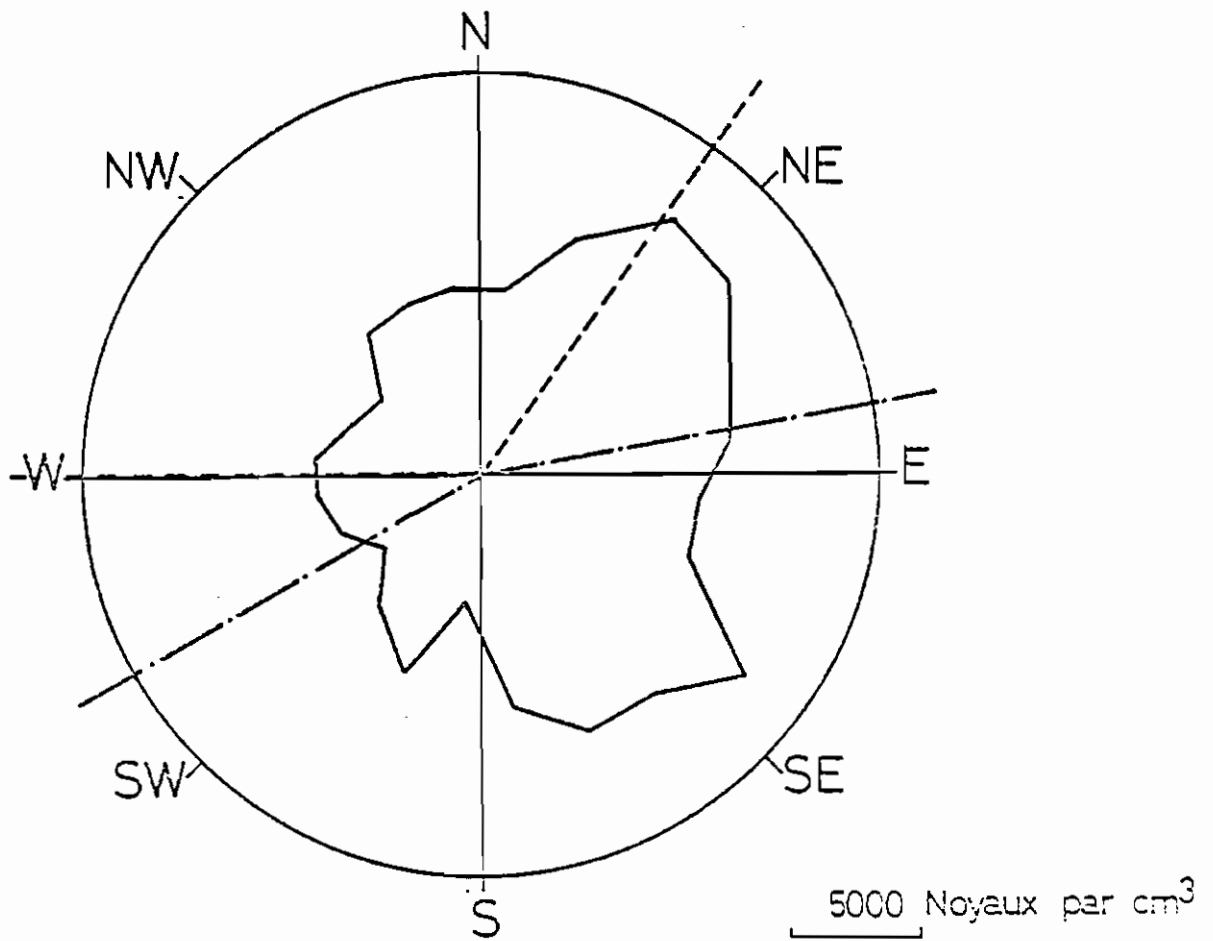
Au cours de nos expériences, la concentration  $n_0$  de l'aérosol varie, à marée haute, entre 1000 et 6000 particules. $\text{cm}^{-3}$  pendant la nuit, et atteint un maximum de 12 000 particules. $\text{cm}^{-3}$  au cours de la journée, les valeurs nocturnes correspondant à "l'aérosol de base". Lors des basses mers diurnes, nous observons des valeurs de  $n_0$  allant jusqu'à  $1.6 \cdot 10^6$  particules. $\text{cm}^{-3}$ . Ceci est à rapprocher des résultats obtenus par PAUGAM (75, 85) qui montre que :

1°) à marée haute, la concentration moyenne  $n_0$  est comprise entre 6000 et 10 000 particules. $\text{cm}^{-3}$ , le maximum ayant lieu à midi (heure locale) comme le montre la figure VI-10-a. Cette augmentation diurne de  $n_0$  met en évidence la formation photochimique d'aérosols fins dans l'air ;  $n_0$  varie également avec la direction du vent et sa valeur maximale est observée sous un vent du Nord-Est (Fig. VI-10-b).

2°) à marée basse et par vent du secteur marin,  $n_0$  peut atteindre  $5 \cdot 10^5$  à  $2 \cdot 10^6$  particules. $\text{cm}^{-3}$  (Fig. VI-11-a) ; ces fortes concentrations sont dues à la création de noyaux par les algues ; cette création varie avec la direction du vent (Fig. VI(11-b) et atteint un maximum par vent du secteur WNW, direction dans laquelle, comme nous l'avons signalé au chapitre II, la largeur du champ d'algues est la plus importante.

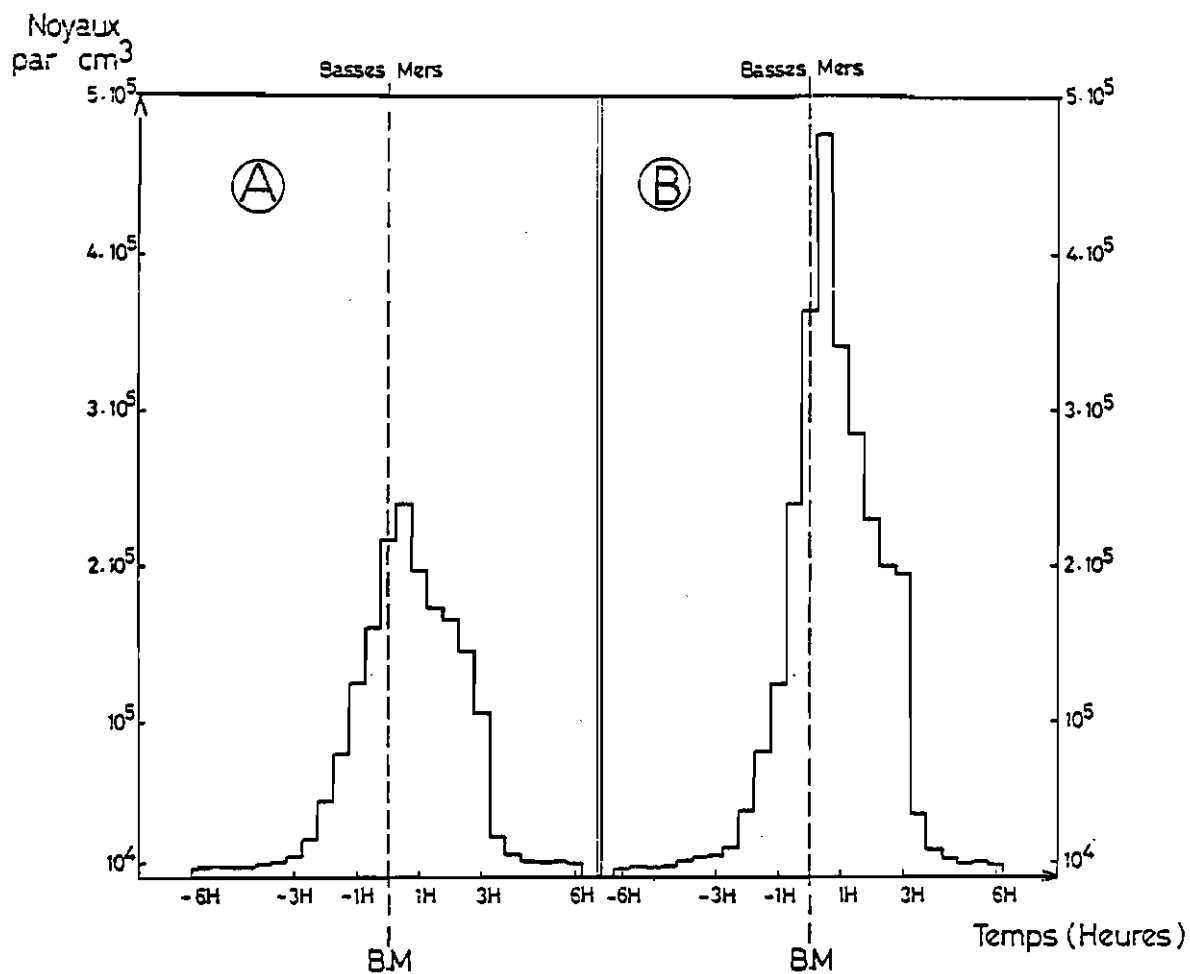


a) concentration en fonction du temps

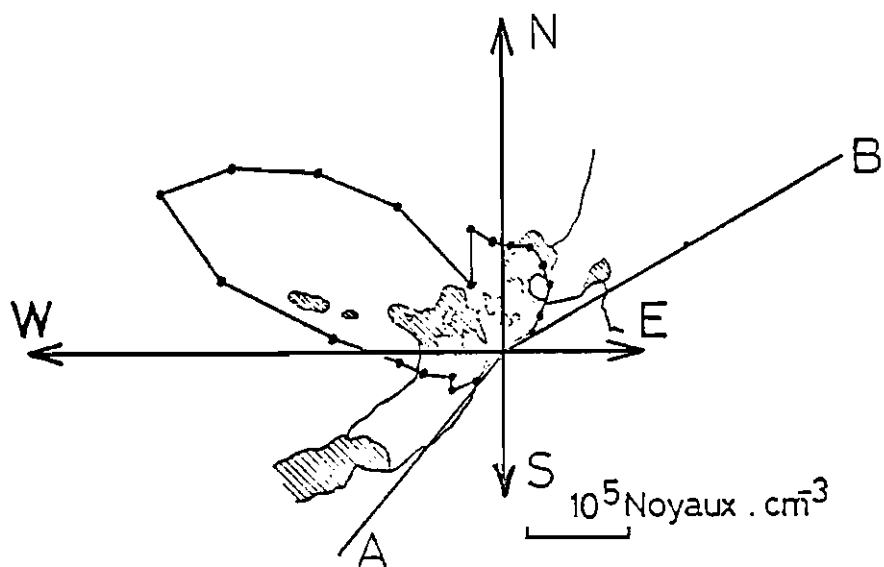


b) concentration en fonction de la direction du vent

Fig. VI-10 : AEROSOL DE BASE A GUISSENY



a) création de noyaux en fonction du temps

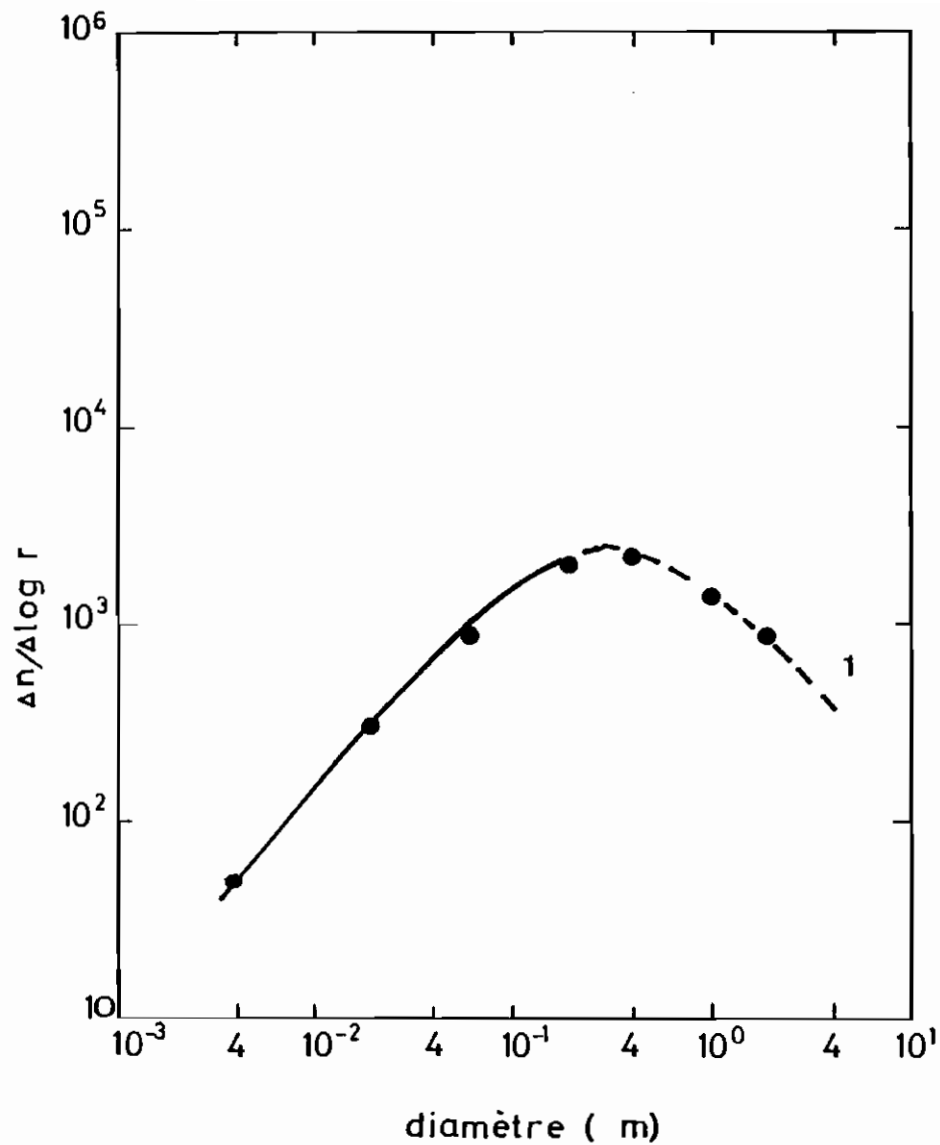


b) création de noyaux en fonction de la direction du vent

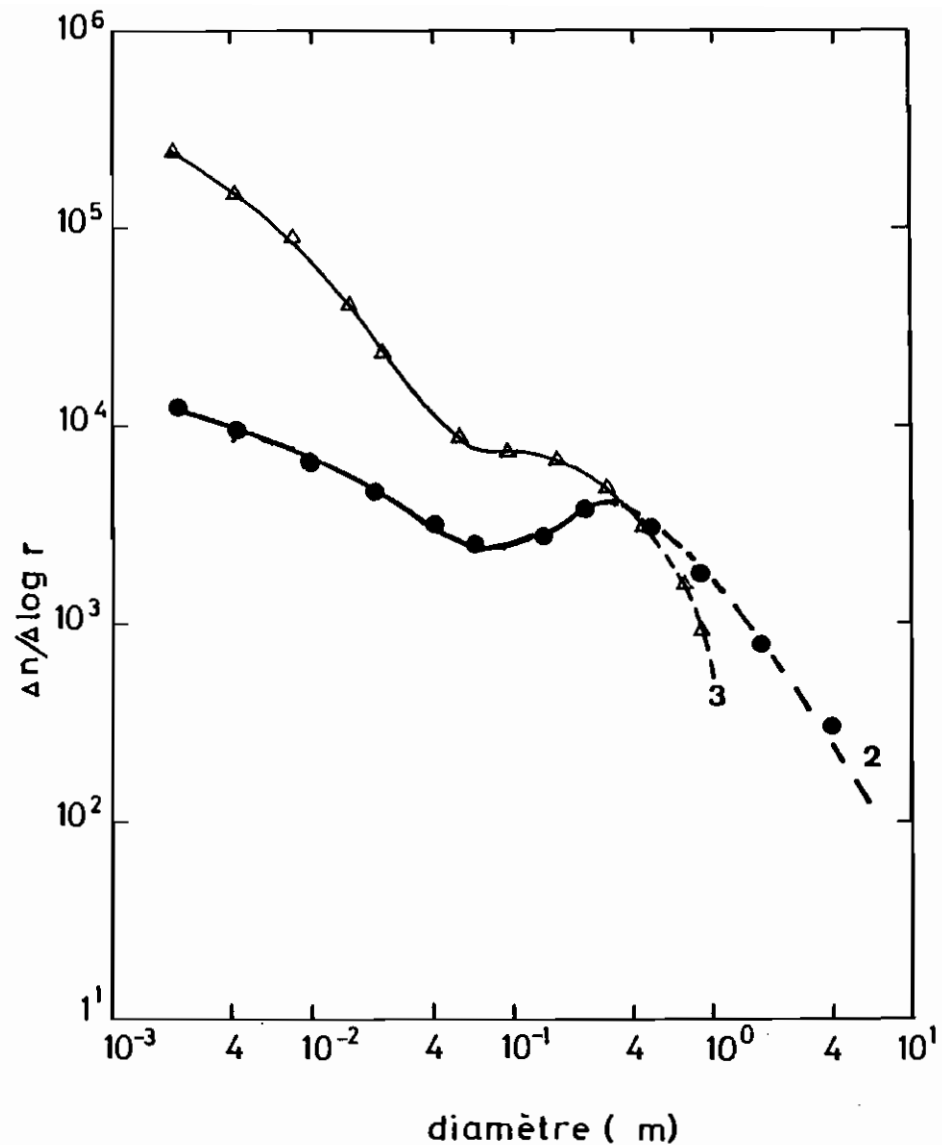
Fig. VI-11 : PRODUCTION DE PARTICULES ULTRA-FINES A GUISSENY

#### 2.4.1. Résultats des batteries de diffusion.

Ces résultats peuvent se classer en deux grands groupes correspondant d'une part à l'air marin (vent d'Ouest à Nord-Est) et d'autre part aux masses d'air continentales. Les caractéristiques des distributions présentées dans ce paragraphe sont données par le tableau VI-4-c ; avec un vent marin et à marée haute, la granulométrie peut être unimodale (Fig. VI-12-a). A marée basse et pendant la journée, la distribution est bimodale, le premier maximum étant placé à  $d_1 \approx 2.10^{-7}$  cm et le second à  $d_2 \approx 3.0 \cdot 10^{-5}$  cm (Fig. VI-12-b, courbes 2 et 3). Ces fines particules sont créées par le "champ d'algues" situé dans le secteur marin W-NNE. Le phénomène de création de noyaux peut être plus ou moins marqué. Lorsqu'il est faible comme sur la courbe 2 de la figure VI-12-b pour laquelle la concentration totale  $n_0$  de l'aérosol est égale à  $14\ 000$  particules. $\text{cm}^{-3}$ , le mode des grosses particules reste situé à  $d_2 > 10^{-5}$  cm comme à marée haute. Mais, dans le cas de fortes productions, ce mode peut se déplacer vers des tailles plus petites. Ce déplacement de maximum est dû au fait que les noyaux ultra-fins créés par les algues donnent, par coagulation, des particules plus grosses en nombre d'autant plus élevé que le phénomène de création est important, ce qui conduit, après un temps suffisant, au camouflagement du maximum  $d_2$  préexistant par celui provenant de la coagulation. Avant ce stade, le spectre de l'aérosol en évolution comporte trois modes (Fig. VI-13-a) : celui des



a) .26/6/76 à 19h12 brume Nno=9000  
mer haute 18h



b) { ● 28/6/76 à 12h25 brume ENE no=14000  
mer basse 13h20  
Δ 29/6/76 à 18h52 brume ENE no=40700  
mer basse 14h m. haute 20h

Fig.VH12: GUISSÉNY (batteries)

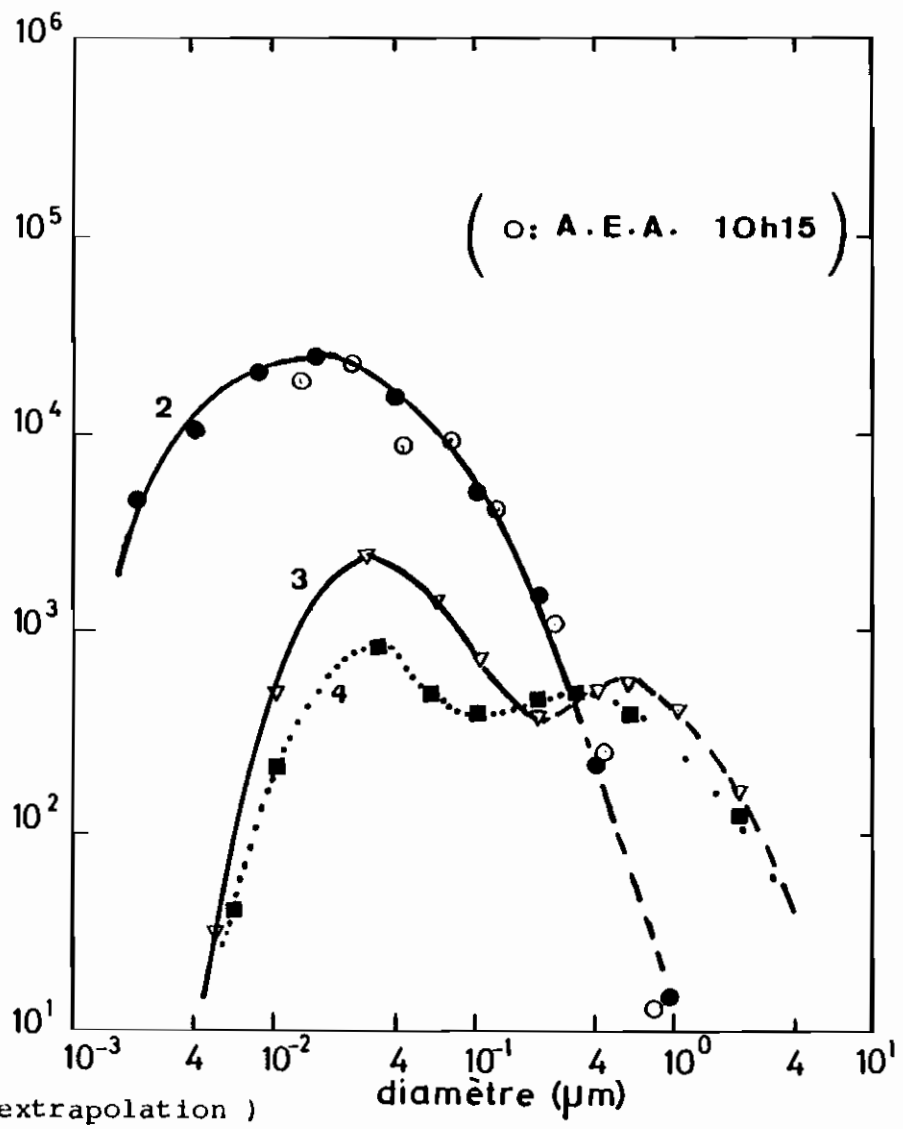
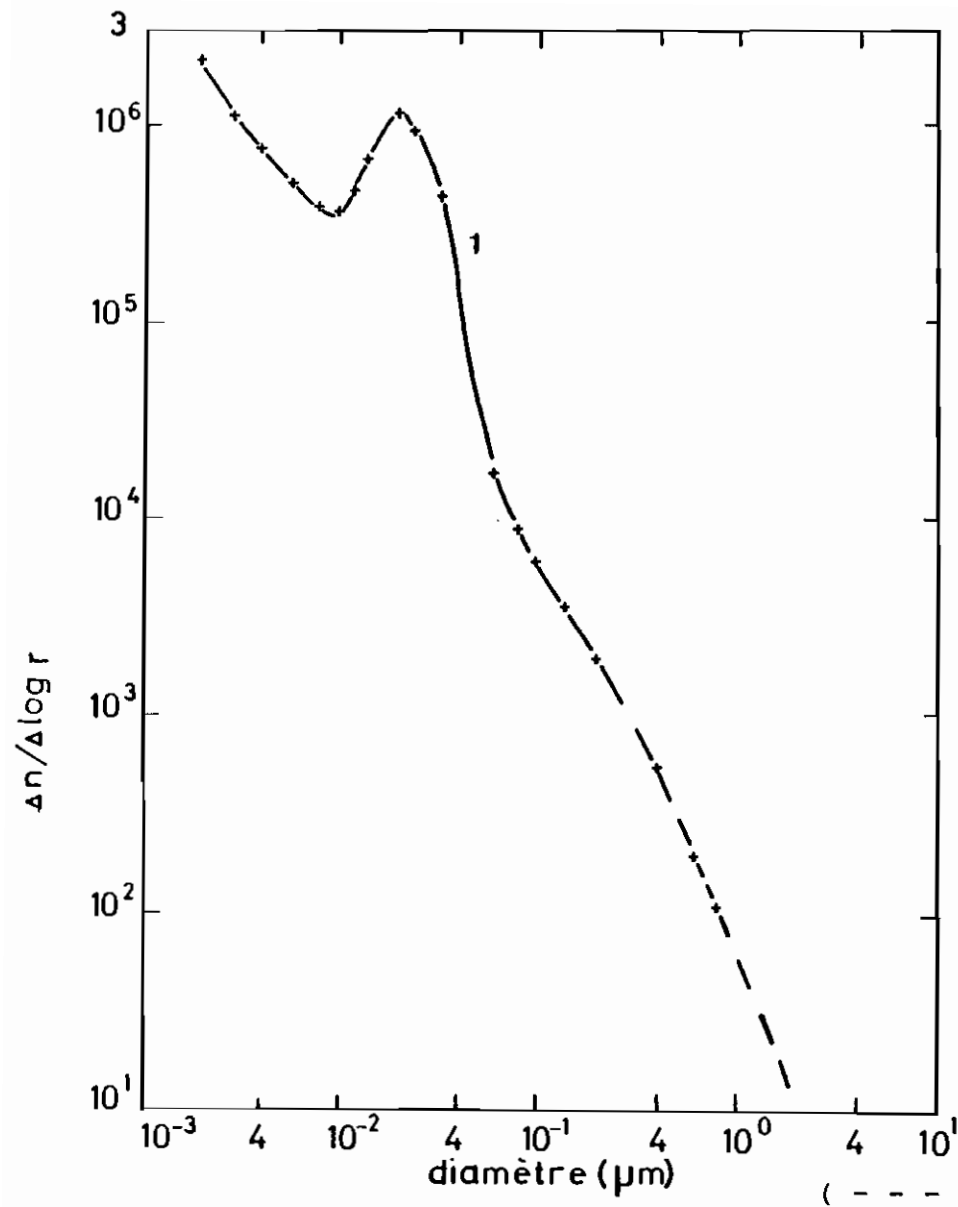
grosses particules qui existaient avant la production des fines, celui des noyaux créés et le dernier provenant de la coagulation ; mais dans les exemples traités , ces différents modes ne sont pas toujours suffisamment distincts pour être mis simultanément en évidence par notre méthode de dépouillement des données.

Avec un vent continental d'Est à Nord-Est, le mode  $d_2$  des grosses particules est situé entre 3.0 et  $6 \cdot 10^{-5}$  cm (Fig. VI-13-b et VI-14). Par contre, le maximum  $d_1$  des fines particules peut maintenant atteindre  $2 \cdot 10^{-6}$  cm (Fig. VI-13, courbes 3 et 4). Cette position de  $d_1$  a déjà été souvent obtenue à Paris et à Guyancourt ; elle peut donc caractériser un aérosol urbain, ou un aérosol formé depuis longtemps et dont la composante ultra-fine a déjà eu le temps de grossir.

L'examen des résultats ci-dessus montre que :

1°) pratiquement dans toutes les situations diurnes non favorables à la production de noyaux par les algues vivantes, les granulométries obtenues indiquent un mode plus ou moins marqué dans la région des particules ultra-fines. Celles-ci seraient créées par les transformations photochimiques de  $H_2S$  provenant de la décomposition des algues suivant le mécanisme rappelé au chapitre I. Les dosages d'anhydride sulfureux effectués simultanément à nos mesures par NGUYEN et coll. (74) ont en effet donné des concentrations non négligeables de  $SO_2$ , concentrations comprises entre 1.4 et





a) 4/7/76 { 15 h 29 NNW soleil-brume  
 { no=463000 mer basse 17h20

b) 7/7/76 { m. b. 8 h 15  
 { pas de brume { ● 10h15 W no=19700  
 { ▽ 14h45 NE no=3300 m.h.14h30  
 { ■ 16 h34 ENE no=2500 m.b.21h

Fig. VI-13: RESULTATS de GUISSENY (batteries)

$3 \mu\text{g.m}^{-3}$ .

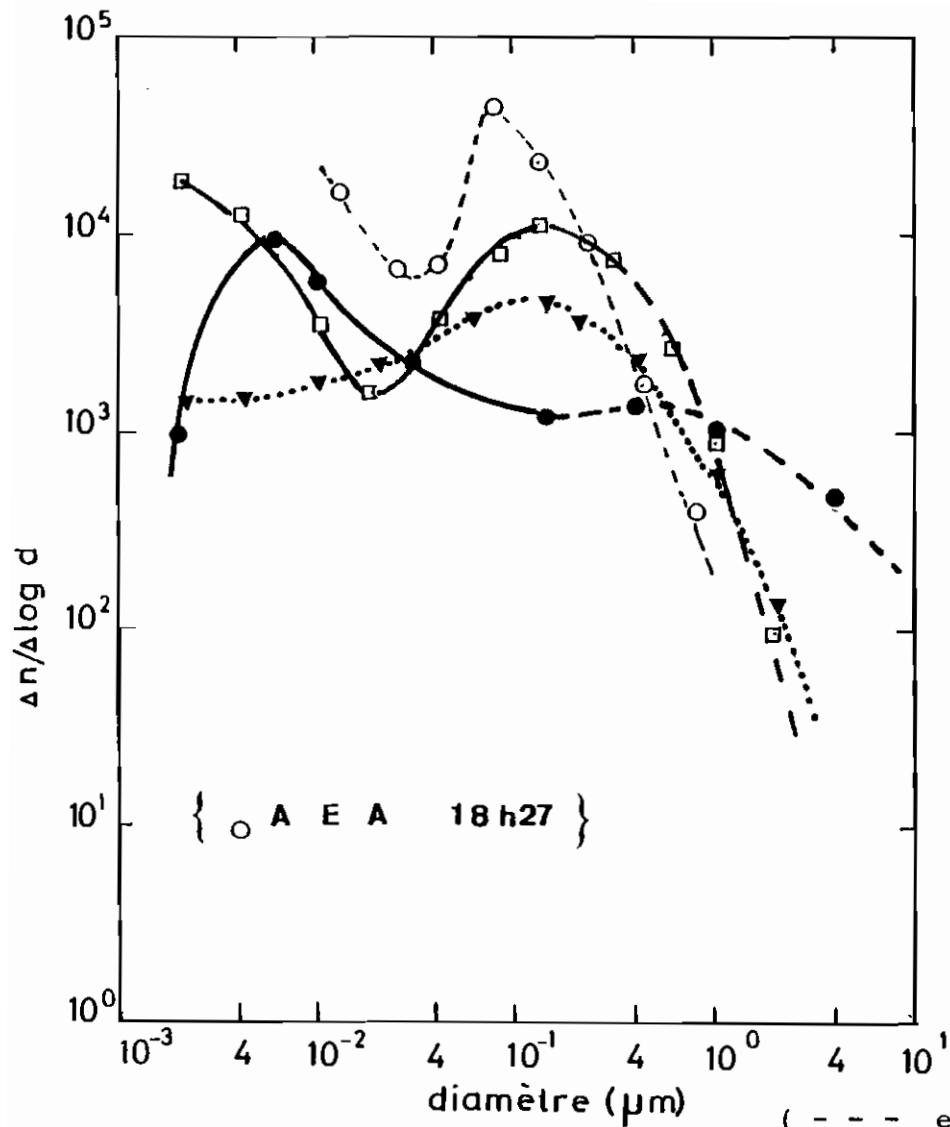
2°) Par temps brumeux, à marée haute ou à marée basse avec faible production de noyaux ( $n_0 \leq 20\ 000 \text{ particules.cm}^{-3}$ ), le diamètre moyen  $d_2$  du mode des grosses particules est compris entre  $3 \cdot 10^{-5}$  et  $10^{-4}$  cm suivant l'importance du phénomène de création.

3°) Par temps clair (sans brume), la concentration de "l'aérosol de base" et la proportion des grosses particules sont plus faibles que ci-dessus ; deux cas sont alors possibles :

a) avec un air marin d'Ouest à Nord-Ouest (Fig. VI-13-b, courbe 2), la création de noyaux conduit rapidement au camouflage de  $d_2$ ,

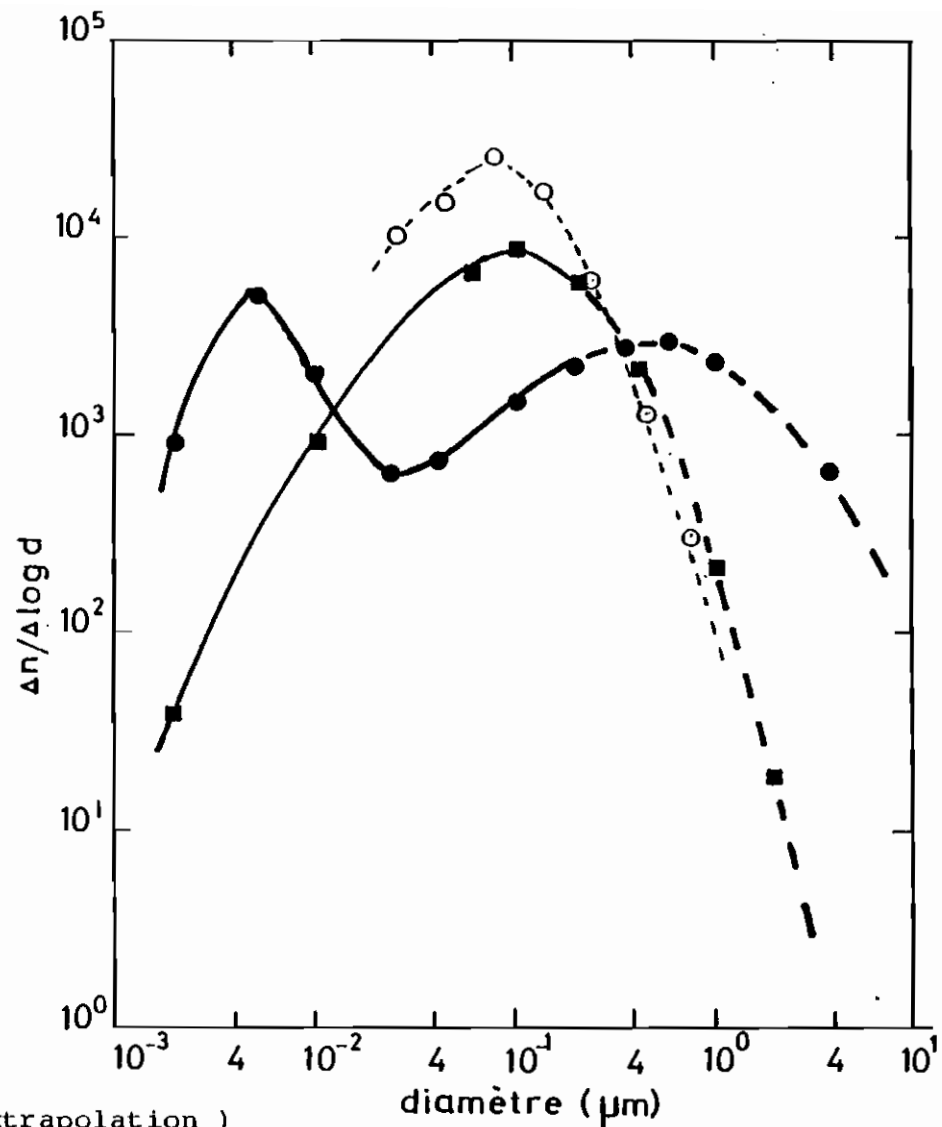
b) Quand le vent vient du NE et de ENE,  $d_2$  est entre  $3 \cdot 10^{-5}$  et  $6 \cdot 10^{-5}$  cm (Fig. VI-13-b, courbes 3 et 4).

La brume s'accompagne donc d'un fort grossissement de l'aérosol. Or, pendant toute la période brumeuse, le vent dominant vient du Nord-Est, ce qui nous soumet à l'influence de l'air continental ayant transité pendant longtemps sur la mer ; l'aérosol ainsi véhiculé a donc eu le temps de se charger d'humidité et de grossir. En effet, soit une masse d'air partie de la région londonienne située à environ 300 km de notre point de mesure, avec une vitesse de  $4 \text{ m s}^{-1}$ , cet air



a) 30/6/76 {

- 9h19 ENE no=9 300 m. haute 8h30
- ▼ 10h04 ENE no=10 200
- 18h27 E no 20 600 m.b.15h m.h.20h30



b) {

- 27/6/76 12h m.b.
- 27/6/76 12h {AEA}
- 2/7/76 12h NNE no=9 000 m b 16h m.h. 9h40

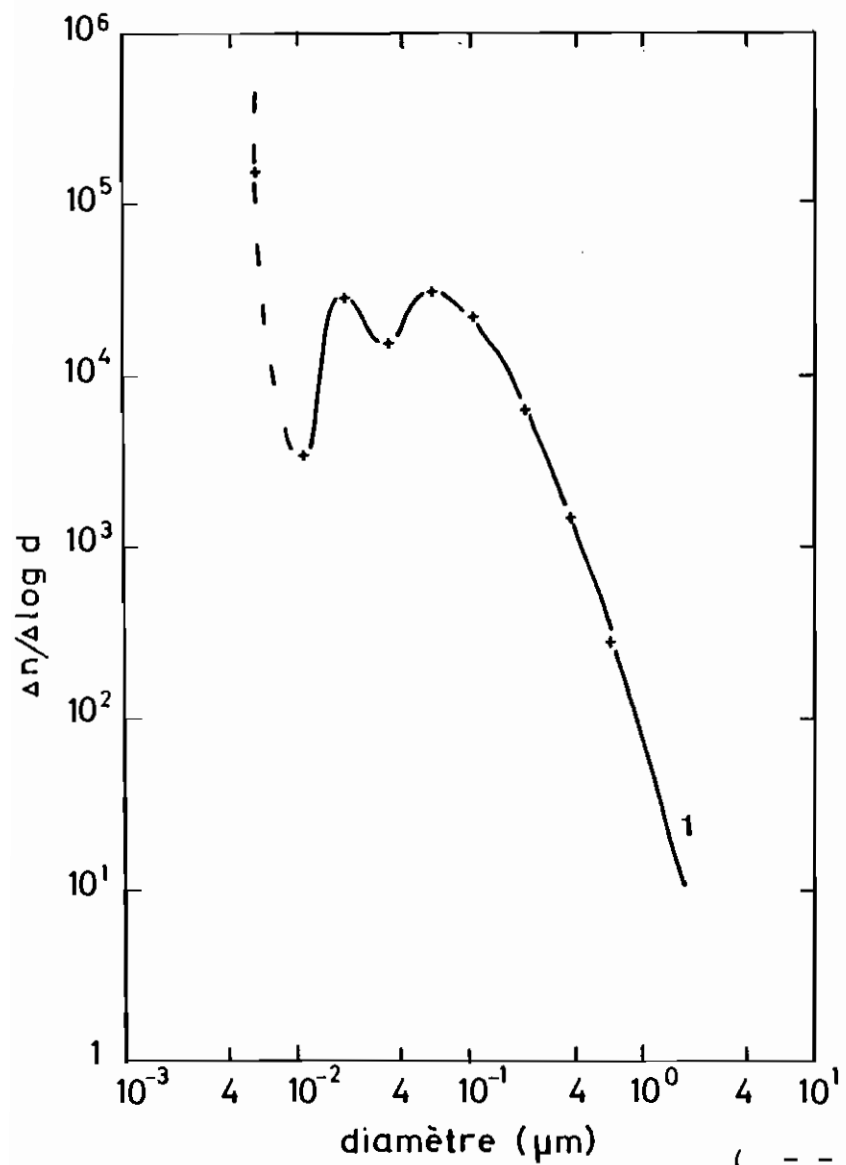
Fig.VI-14 : GUISSÉNY (batteries)

met 21 h pour nous atteindre et grossit à la fois par coagulation et par humidification. Au cours de ce long séjour dans l'atmosphère, une partie des grosses particules tombe par gravité ; ainsi, si nous considérons des noyaux de  $10^{-5}$  et  $3 \cdot 10^{-5}$  cm, nous avons vu au paragraphe V-1-2 que leurs vitesses de chute étaient respectivement  $2.3 \cdot 10^{-4}$  cm. $s^{-1}$  et  $1.4 \cdot 10^{-3}$  cm. $s^{-1}$ , ce qui donne, pour la durée de leur traversée les hauteurs respectives de chute dans l'air calme : 17 m et 106 m. Donc, en supposant qu'il n'y ait pas de convection dans l'atmosphère, il suffira que des particules de diamètre inférieur ou au plus égal à  $3 \cdot 10^{-5}$  cm se trouvent au départ à plus de 106 m d'altitude pour nous arriver au point de mesure. L'intense circulation maritime dans la Manche (environ 400 bateaux par jour) contribue également à la création des gros noyaux.

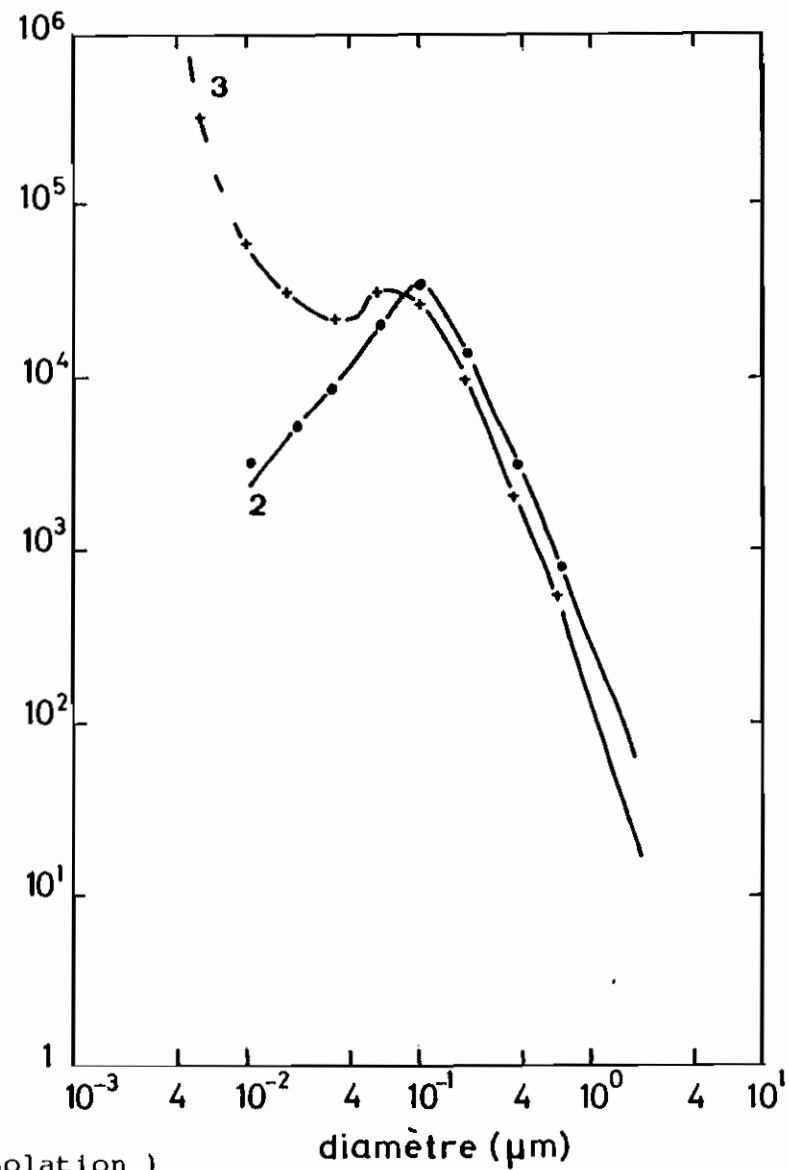
#### 2.4.2. Résultats du compteur électrique.

Les granulométries établies grâce au compteur électrique sont représentées par les figures VI-15 et VI-17. On y trouve en pointillé l'allure des courbes dans la zone des diamètres inférieurs à  $10^{-6}$  cm, les points expérimentaux obtenus dans cette région n'ayant qu'une valeur indicative.

Les courbes 1 (Fig. VI-15-a et VI-16-a) sont des exemples de granulométries que donne l'analyseur électrique d'aérosol (A.E.A) par vent d'Est et à marée basse, avec deux maxima à  $d = 8 \cdot 10^{-6}$  cm et  $2 \cdot 10^{-6}$  cm ; la remontée dans la



a) + 10 h 10 E mer basse à 12 h



b) { + 20 h NE  
• 18 h 16 N } mer haute à 18 h

Fig.VI-15: GUISSÉNY 26/6/76 (A.E.A)

région  $d < 10^{-6}$  cm correspond à la création locale de fines particules.

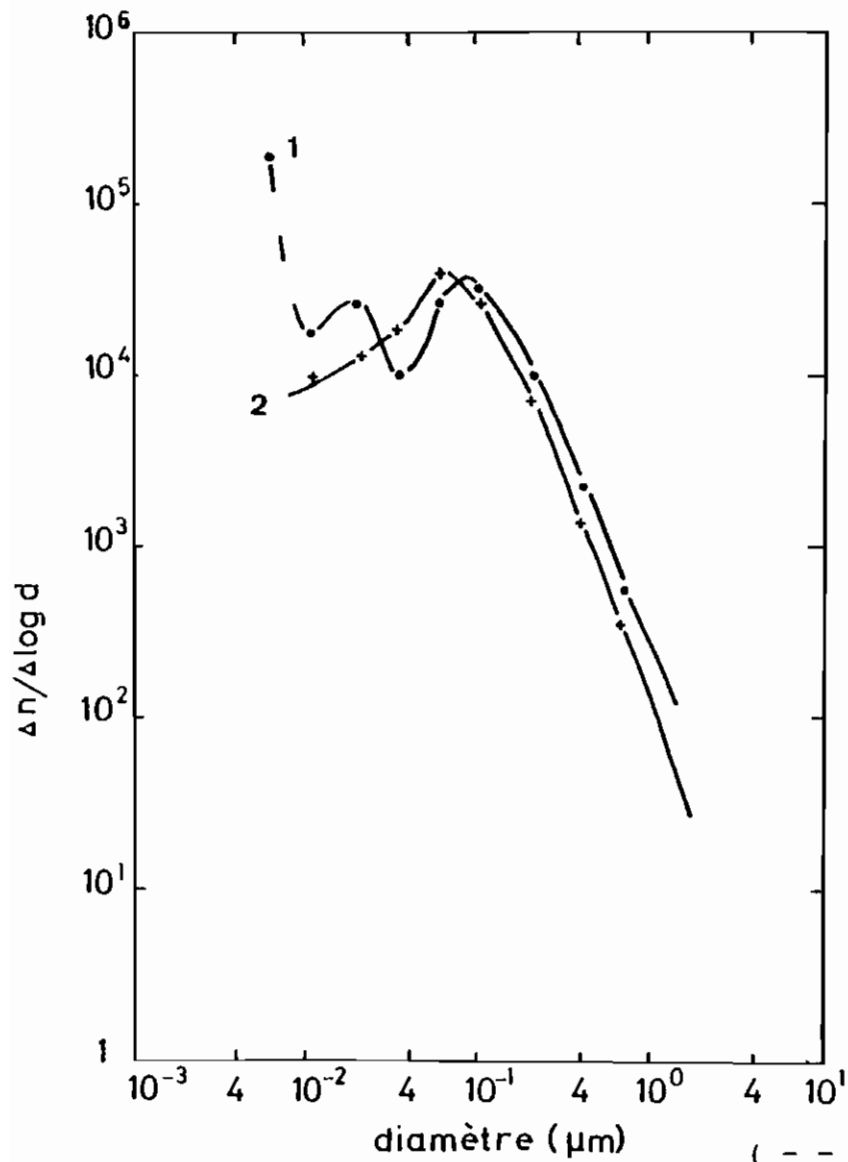
Avec un vent marin (du Nord à l'Ouest), deux cas sont possibles :

1°) à marée haute, la granulométrie présente un seul maximum (courbes 2, Fig. VI-15-b et VI-16-a) ; la création de noyaux par effet photochimique à partir du  $\text{SO}_2$  dont nous avons signalé ci-dessus la présence étant alors faible, leur coagulation ne conduit pas à une concentration importante de particules suffisamment grosses pour être détectables à l'A.E.A.

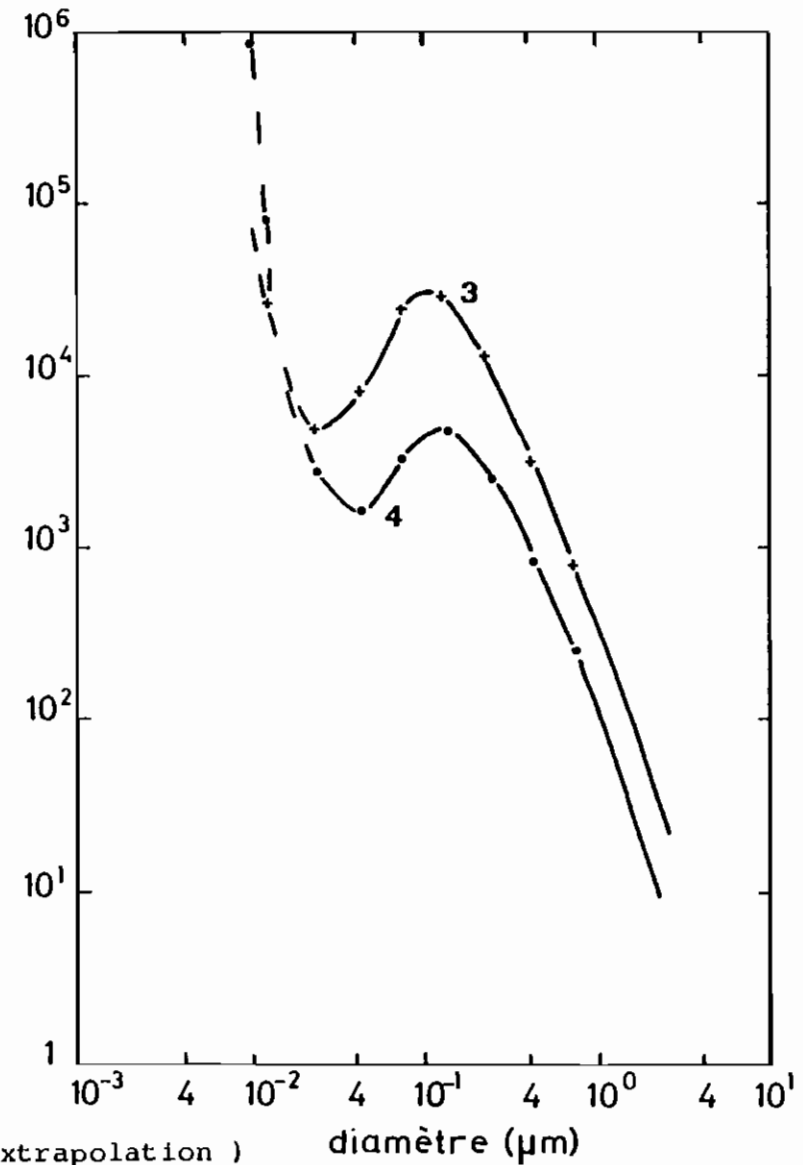
2°) aux basses mers diurnes, le phénomène de production de noyaux par le champ d'algues étant important les fortes concentrations de l'aérosol naissant conduisent rapidement, par coagulation, à un grand nombre de particules détectables à l'A.E.A. ; c'est ce qui explique la remontée des courbes 3 et 4 (Fig. VI-16-b).

Ces résultats sont résumés sur la figure VI-17 où on peut remarquer la variation de la granulométrie en fonction de la direction du vent et de la marée : l'aérosol continental (courbe 1) présente le même mode à  $2 \cdot 10^{-6}$  cm qu'à Paris et à Guyancourt ; ce maximum peut donc être considéré comme caractéristique de l'aérosol urbain.

Les distributions que nous venons de présenter nous permettent les observations suivantes :



a) { + 30/6/76 à 20h mer haute 20h  
 . 1/7/76 à 13h ENE mer basse 15h15



b) { + 2/7/76 à 17h mer basse 16h WNW  
 . 4/7/76 à 17h mer basse 17h30 NW

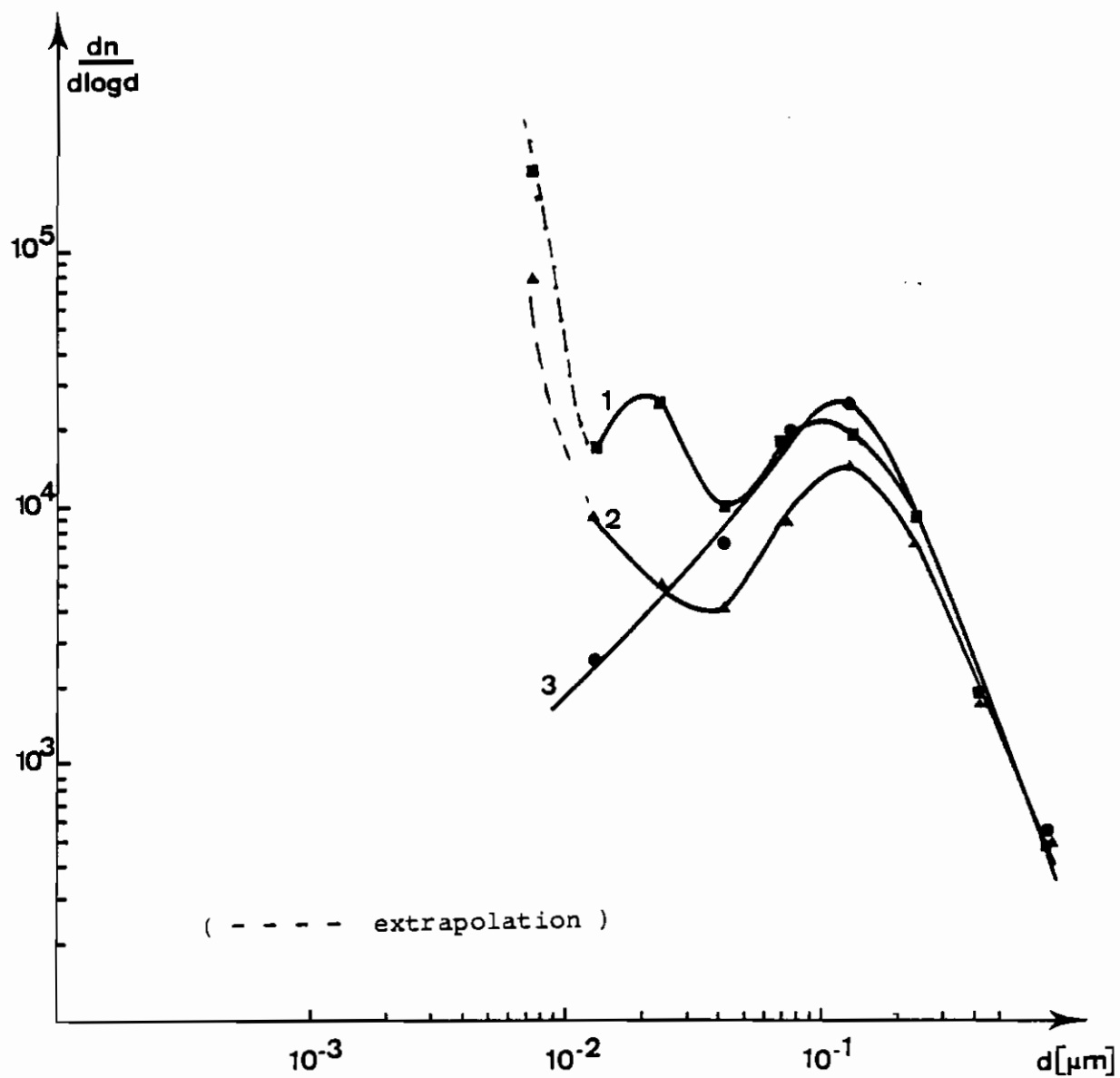
Fig.VI-16 RESULTATS de GUISSÉNY (A.E.A)

1°) dans le domaine  $10^{-6}$  cm à  $2 \cdot 10^{-6}$  cm, l'A.E.A., comme les batteries de diffusion, indique parfois un maximum.

2°) Par contre, alors que le mode des particules ultra-fines de diamètre  $d$  inférieur à  $10^{-6}$  cm, quand il existe, est bien déterminé par les batteries, l'A.E.A ne peut en donner qu'une indication si les concentrations sont suffisamment stables et si  $d$  est supérieur à  $7 \cdot 10^{-7}$  cm.

3°) D'autre part, dans le domaine  $d > 10^{-5}$  cm, il n'y a pas toujours accord entre les deux méthodes : les batteries de diffusion montrent que le diamètre moyen  $d_2$  du mode des grosses particules est compris entre  $8 \cdot 10^{-6}$  cm et  $10^{-4}$  cm alors que, avec l'A.E.A.,  $d_2$  varie entre  $8 \cdot 10^{-6}$  cm et  $1.3 \cdot 10^{-6}$  cm, c'est-à-dire dans les mêmes limites qu'à Paris et à Guyancourt. Or, dans ces deux derniers sites, les concentrations moyennes  $n_0$  étaient de 6 à 10 fois plus élevées qu'à Guisseny où nous avons eu de la brume presque en permanence, même avec  $\bar{n}_0$  voisin de  $6\ 000$  particules. $\text{cm}^{-3}$  et une visibilité parfois inférieure à 3 km (75) ; la proportion des gros noyaux est donc importante puisque la diffusion de la lumière qui est à l'origine de l'atténuation du flux lumineux qui nous arrive du soleil (et donc à l'origine de la brume) est d'autant plus importante que le diamètre des particules diffusantes est grand. Nous sommes alors conduits à dire que ce sont les résultats des batteries de diffusion qui tradui-





1: 1-7-1976 à 11h30-14h15 vent d'Est

2: 3-7-1976 à 10h10-11h20 vent du N W , mer basse

3: 26-6-1976 à 18h15 vent du N W , mer haute

fig·VI-17: variations de la distribution avec la direction du vent (A.E.A.)

sent davantage la réalité ; ce désaccord serait dû à la faible mobilité des particules chargées de diamètre supérieur à  $10^{-5}$  cm, d'où la mauvaise sélectivité au-dessus de cette taille.

Afin de comparer nos résultats à ceux obtenus par différents auteurs, nous avons représenté les courbes ci-dessus sous la forme :

$$\frac{dn}{d \text{ Log } d} = f(d) \quad (\text{VI-9})$$

Ce faisant, nous introduisons une certaine distorsion dans les spectres. En effet, l'expression VI-9 peut se mettre sous la forme :

$$\frac{dn}{d \text{ Log } d} = \frac{dn}{d(d)} \cdot \frac{d(d)}{d \text{ Log } d}$$

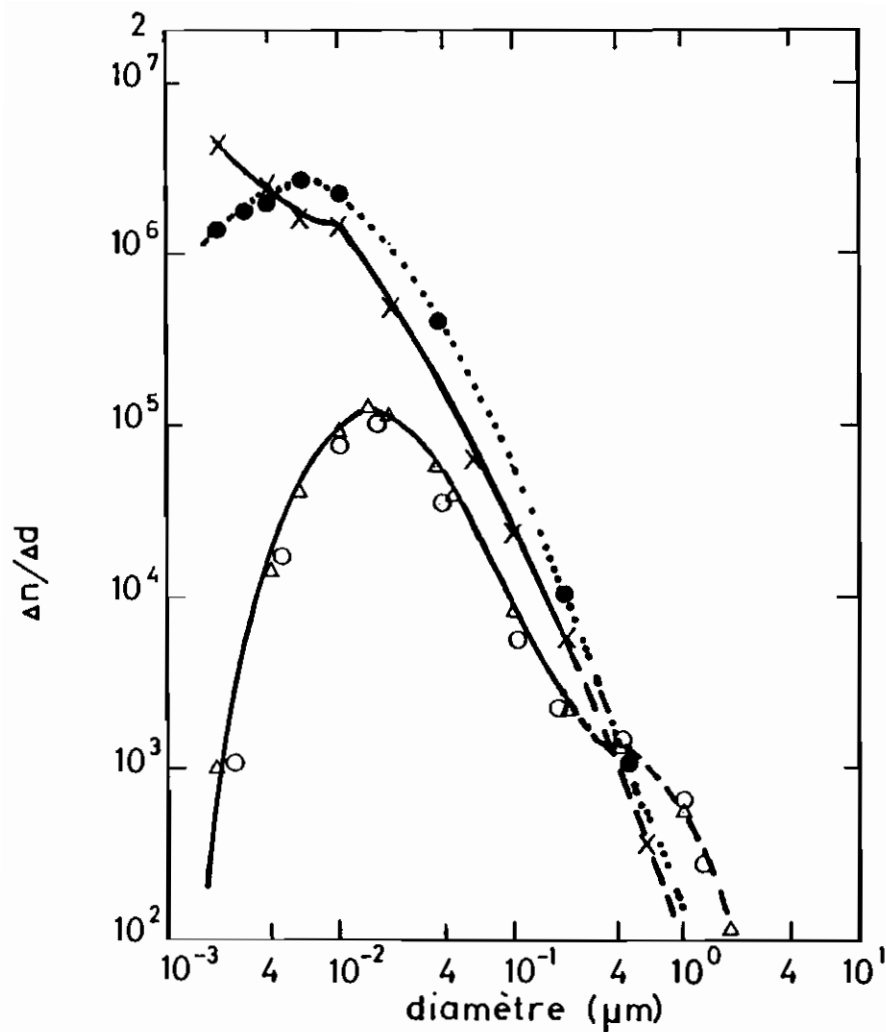
ce qui peut se ramener à :

$$\frac{dn}{d \text{ Log } d} = d \cdot \frac{dn}{d(d)} \quad (\text{VI-10})$$

Les représentations sous la forme VI-9 équivalent donc à une multiplication par  $d$  de la "densité" réelle  $\frac{dn}{d(d)}$  des particules dans l'intervalle  $(d, d + d(d))$ . Les granulométries vraies doivent alors se donner en  $dn/d(d)$ . Les figures VI-18 déduites des résultats des figures VI-13 et VI-14 montrent des exemples de cette représentation en  $\Delta n/\Delta d$ .

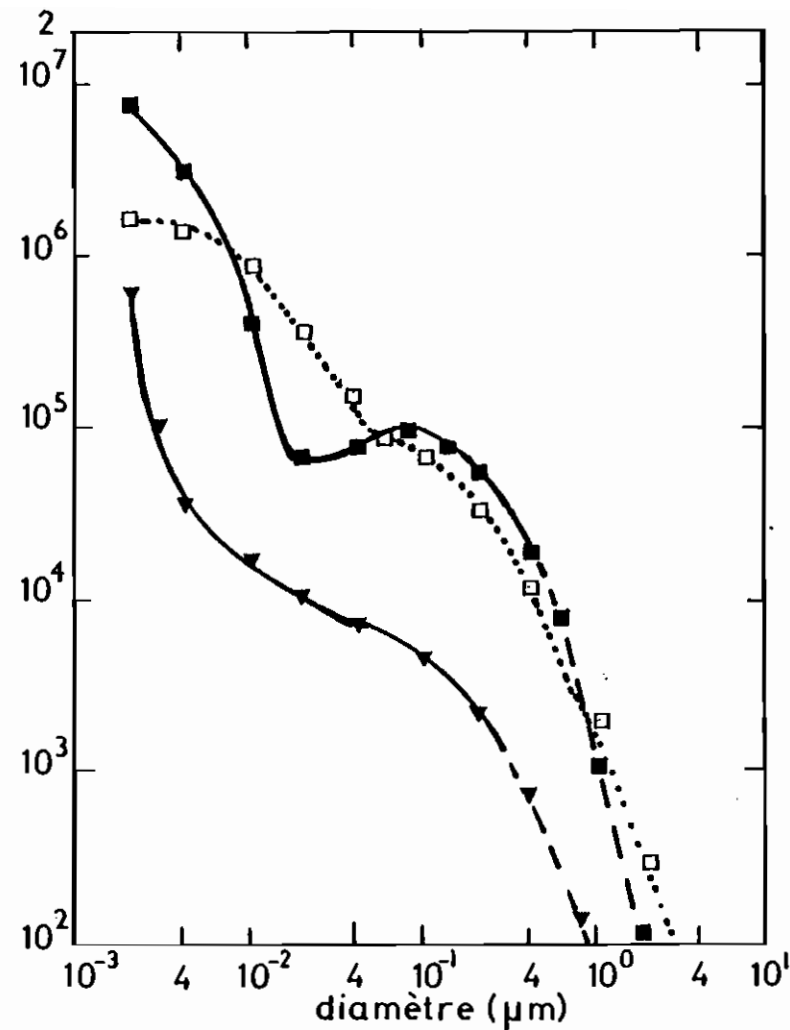
On constate que :

1°) les "densités" sont plus importantes que ci-dessus, surtout dans le domaine des particules de diamètre inférieur



a) temps non brumeux  
7/7/76

- x 7h58
- 10h15
- △ 14h45
- 16h34



( - - - extrapolation )

b) temps brumeux

- 30/6/76 18h27
- ▼ 30/6/76 10h04
- 1/7/76 13h19

Fig.VI-18: VARIATION de la GRANULOMETRIE avec la BRUME à GUISSENY

à  $10^{-6}$  cm.

2°) Les maxima sont déplacés vers les faibles dimensions. C'est ainsi que le diamètre moyen  $d_2$  du mode des grosses particules se déplace en fonction de la brume et de la direction du vent, entre  $4 \cdot 10^{-6}$  et  $2 \cdot 10^{-5}$  cm.

En résumé, les mesures que nous avons effectuées dans les différents sites d'étude nous permettent d'abord de dire qu'il y a souvent, comme le montrent les figures VI-5-b, VI-7-a, VI-13-b et VI-14, un assez bon accord entre notre méthode de calcul des batteries de diffusion et l'analyseur électrique d'aérosol dans le domaine  $10^{-6} - 10^{-4}$  cm. L'accord est moins bon quand une bimodalité existe dans cet intervalle ou quand la proportion des grosses particules ( $d > 10^{-5}$  cm) est importante. Nos résultats, qui sont qualitativement en accord avec d'autres travaux récents (51, 52), nous permettent, en outre, de classer l'aérosol atmosphérique en deux grands groupes:

a) en zone non polluée, la granulométrie est unimodale comme l'ont montré les exemples de Guisseny sur l'aérosol marin pur dont le maximum se situait entre 2 et  $4 \cdot 10^{-5}$  cm : lorsqu'il existe dans cette zone une source de création intermittante de particules ultra-fines, il apparaît un second mode qui, du fait de la coagulation tend à disparaître au cours du temps comme l'a également montré WALTER (109).

b) En milieu fortement pollué (zone urbaine par exemple), la distribution est généralement bimodale, avec les maxima situés dans l'intervalle  $2 \cdot 10^{-6}$  cm -  $8 \cdot 10^{-6}$  cm pour les grosses particules et  $2 \cdot 10^{-7}$  -  $10^{-6}$  cm pour les particules ultra-fines. Cette bimodalité est souvent observée, même pendant la nuit. Les exemples de la figure VI-7-b, obtenus au lever du jour sans soleil, nous montrent l'augmentation de la proportion des fines particules quand on s'approche de l'heure de la grande circulation automobile. Cette observation nous conduit à nous demander si les gaz d'échappement automobile ne contiendraient pas une forte proportion de particules ultra-fines.

C'est ce qui nous a conduit à étudier aussi bien les aérosols de combustion dans les moteurs automobiles et les chaudières à mazout que les fumées de tabac.

### 3. ETUDE D'UN AEROSOL DE COMBUSTION.

Trois exemples d'aérosol de combustion ont été étudiés : ce sont : un gaz d'échappement automobile, un gaz de cheminée de chaudière domestique à mazout et une fumée de tabac. L'aérosol est d'abord introduit dans un sphère de 800 l (Fig. VI-19) d'où il est ensuite prélevé par le CNC et deux pompes. Avant de donner les résultats obtenus aussi bien par les batteries de diffusion que le compteur électrique, nous décrivons succinctement le montage expérimental utilisé.

### 3.1. Montage.

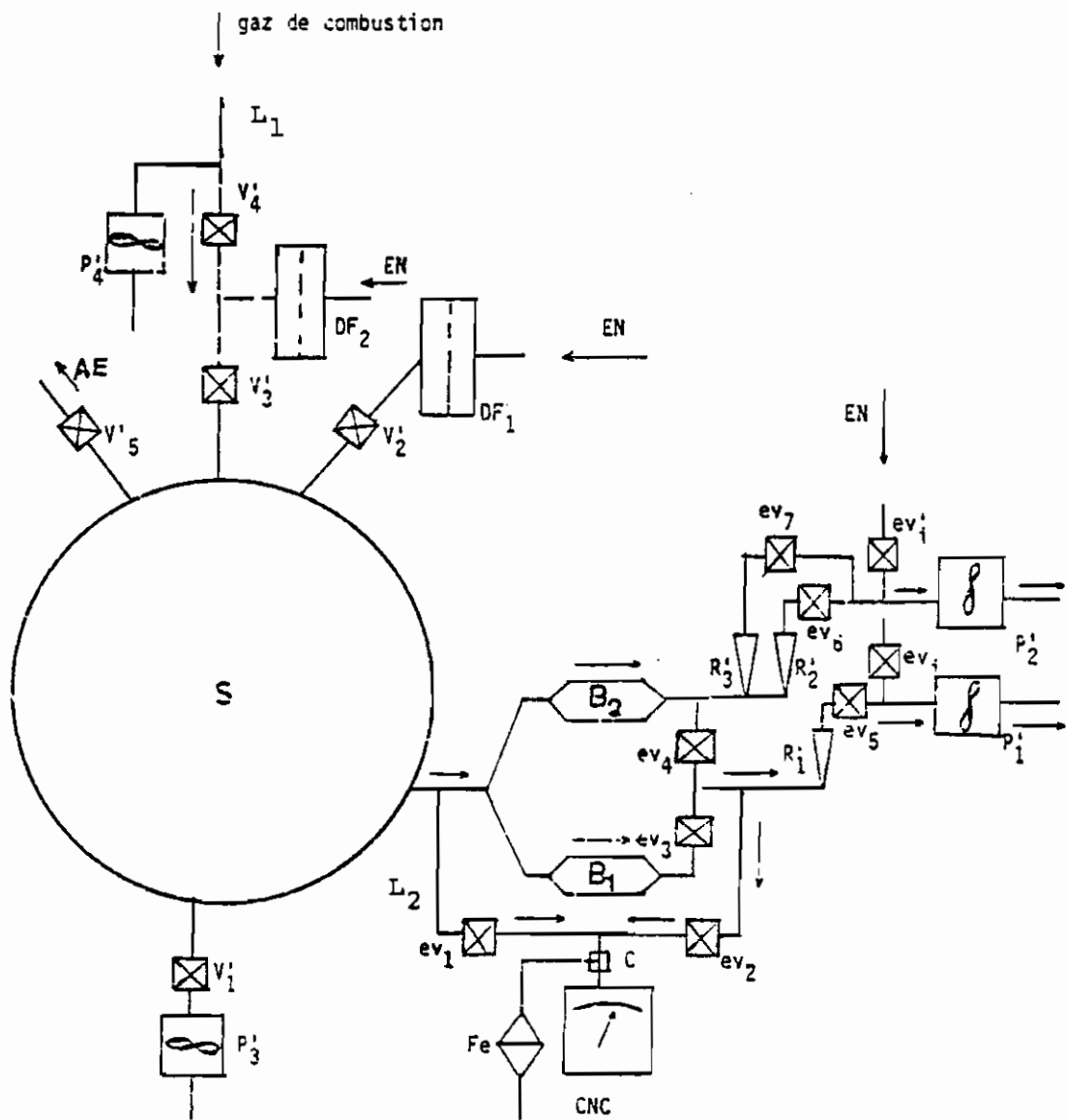
L'appareillage est constitué de l'analyseur électrique d'aérosols (AEA), du CNC avec le même montage des batteries qu'au chapitre II, et d'un ensemble de prélèvement-stabilisation constitué d'une sphère de 800 litres et de pompes (Fig. VI-19).

Deux dièdres filtrants  $DF_1$  et  $DF_2$  contenant des filtres roses Schneider-Poolmann permettent, grâce à la pompe  $P'_3$ , de créer dans la sphère une atmosphère pure exempte de particule. Cette sphère communique avec le point de Combustion par un tuyau  $L_1$  et avec le CNC par un autre tuyau  $L_2$ . La pompe  $P'_4$  aspire, à un débit de  $35 \text{ m}^3/\text{h}$ , l'aérosol de combustion dont seulement une infime partie passe dans la sphère où elle est diluée. Le commutateur C permet de brancher le CNC soit sur le filtre  $F_e$ , soit sur le circuit des batteries.

Le gaz d'échappement est celui d'une voiture Renault 4 dont le tuyau d'échappement est directement branché sur  $L_1$ . Le gaz de cheminée est prélevé juste à la sortie de celle-ci. L'aérosol de combustion de tabac n'est autre qu'une fumée de cigare.

### 3.2. Pratique d'une mesure.

Les vannes  $V'_1$ ,  $V'_2$  et  $V'_3$  étant ouvertes et  $V'_4$  et  $V'_5$  fermées, on aspire, au moyen de la pompe  $P'_3$  et pendant une quinzaine de minutes, l'air atmosphérique à travers les



- |                   |  |  |
|-------------------|--|--|
| C : commutateur   | ev : électrovanne                            | AE : sortie vers l'AEA                               |
| EN : entrée d'air | S : sphère                                   | CNC : compteur de royaux                             |
| V' : vanne        | B <sub>1</sub> , B <sub>2</sub> : batteries  | DF <sub>1</sub> , DF <sub>2</sub> : dièdres filtrant |
| Fe : fiitre       | R <sub>1</sub> , R <sub>2</sub> : rotamètres | P <sub>1</sub> ...P <sub>4</sub> : pompes            |

Fig. VI-19 : ETUDE D'UN AEROSOL DE COMBUSTION

filtres  $DF_1$  et  $DF_2$ . La pompe  $P'_4$  étant en marche et aspirant le gaz de combustion, on ouvre  $V'_4$  pendant une demi seconde environ avant de la refermer. On introduit ainsi dans la sphère une petite fraction de gaz de combustion qui est alors dilué dans l'air propre préexistant dans l'enceinte. On ferme ensuite  $V'_1$  et on arrête les pompes  $P'_3$  et  $P'_4$ . La vanne  $V'_5$  étant maintenant ouverte, on effectue les mesures simultanément avec l'AEA et les batteries de diffusion.

Le tuyau d'échappement de l'automobile est branché à la sphère S par l'intermédiaire d'un tuyau  $L_1$  de 3 m de long, alors que le tuyau  $L_3$  qui va de la sortie de la cheminée à l'enceinte S a une longueur de 5 m. D'autre part, cette sortie de la cheminée est située à environ 5 m de la chaudière placée au niveau du sol où se trouvent nos appareils de mesure.

### 3.3. Résultats.

Pour minimiser les effets de la coagulation, les concentrations  $n_0$  des noyaux dans la sphère sont comprises entre 38 000 et 70 000 particules. $\text{cm}^{-3}$ . Dans le tableau VI-5-a sont portées les caractéristiques des distributions obtenues aux batteries de diffusion. Ce tableau montre que le spectre de dimensions de chacun des aérosols étudiés peut être représenté par la somme de deux distributions gaussio-logarithmiques de rayons moyens  $r_1$  et  $r_2$  ; la somme F des



probabilités de présence des particules dans les différentes classes, nous indique le pourcentage d'explication du spectre de l'aérosol par la granulométrie obtenue.

La figure VI-20 montre que, avec un gaz d'échappement automobile comme avec un gaz de cheminée, on obtient une bimodalité plus ou moins marquée. Le maximum  $r_1$  est situé aux environs de  $10^{-7}$  cm alors que  $r_2$  se trouve entre  $10^{-6}$  cm et  $4 \cdot 10^{-6}$  cm. Le premier mode, celui des particules ultra-fines, proviendrait de la condensation des produits gazeux de combustion; quant au second, il serait dû d'une part aux noyaux provenant de la combustion incomplète, et d'autre part à ceux entraînés hors des chambres de combustion (moteurs ou chaudière) et des tuyaux d'échappement ou des cheminées par le flux de gaz.

On remarque, avec les données du tableau VI-5-b que les gaz d'échappement contiennent entre 4 et 9 % de particules de diamètre inférieur à  $10^{-6}$  cm et plus de 20 % de celles dont la taille est supérieure à  $10^{-5}$  cm. Par contre, avec la cheminée, on a les valeurs suivantes :

1°) 25 à 36 % du spectre sont représentés par des particules de diamètre inférieur ou égal à  $10^{-6}$  cm,

2°) moins de 10 % de ces particules ont des dimensions supérieures à  $10^{-5}$  cm.

Dans nos conditions expérimentales, l'aérosol produit par une voiture contient donc une plus forte proportion de grosses particules que celui provenant d'une cheminée. Ceci peut s'expliquer par le fait que, dans le premier cas la pression du moteur projette plus fortement les gros noyaux

TABLEAU VI-5 : AEROSOL DE COMBUSTION

## a) Caractéristiques des distributions

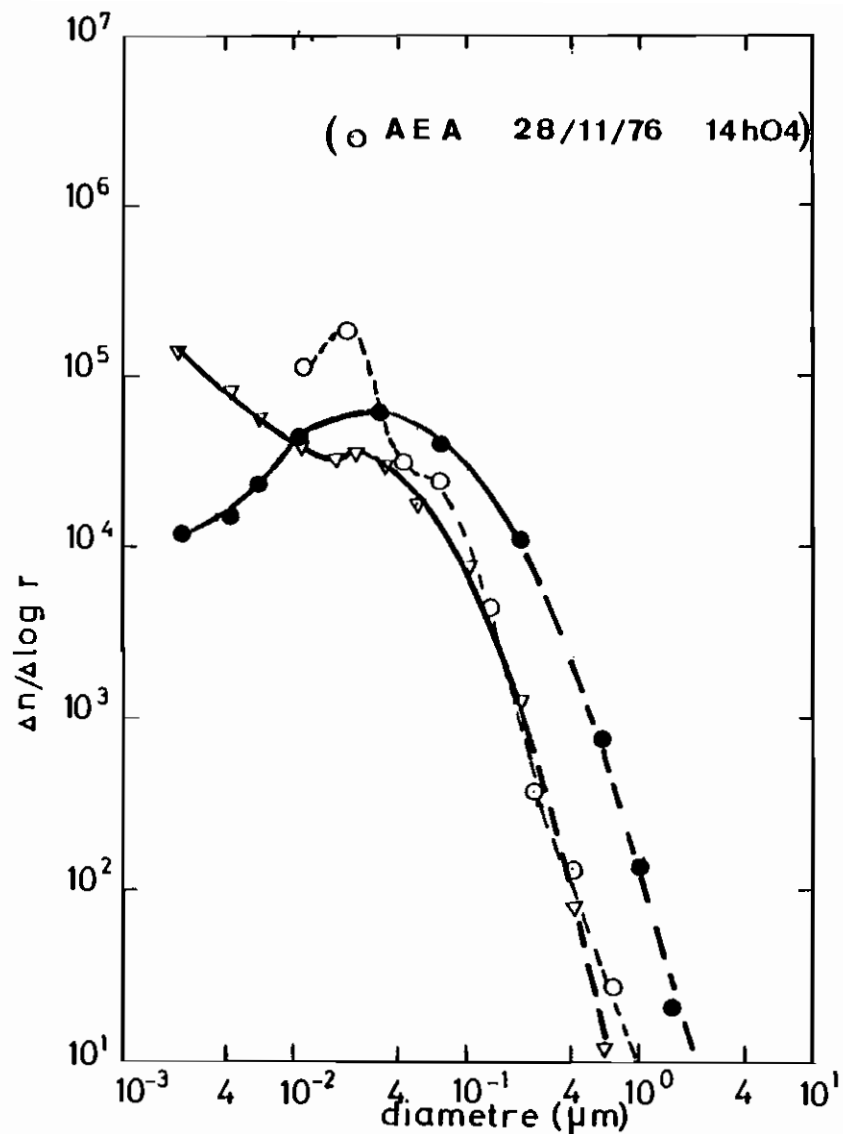
 $r_1, r_2$  = rayons moyens $A_1, A_2$  = proportion de particules dans chaque mode $\sigma_1, \sigma_2$  = écarts types

F = probabilité totale

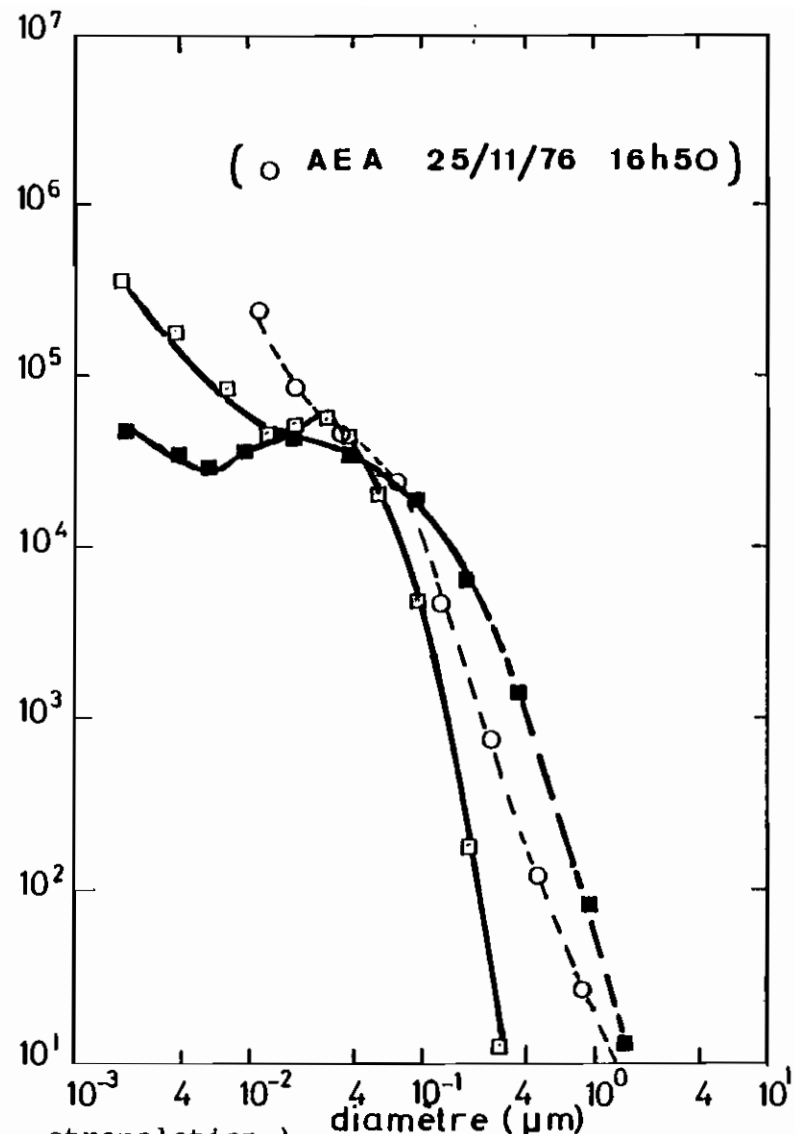
ORIGINE DE L'AEROSOL	DATE	HEURE	$r_1$ (cm)	$r_2$ (cm)	$\sigma_1$	$\sigma_2$	$A_1$	$A_2$	F
AUTOMOBILE	11/10/76	15h30	$1 \cdot 10^{-7}$	$2.5 \cdot 10^{-6}$	0.84	0.90	0.01	0.99	1
"	25/11/76	16h50	$1 \cdot 10^{-7}$	$2.5 \cdot 10^{-6}$	0.84	0.90	0.07	0.93	1
CHEMINEE	28/11/76	14h04	$10^{-7}$	$1.9 \cdot 10^{-6}$	0.85	0.73	0.28	0.72	1
	29/11/76	16h46	$10^{-7}$	$1.8 \cdot 10^{-6}$	0.87	0.54	0.44	0.56	1

## b) pourcentage des particules de diamètres inférieurs aux valeurs indiquées

ORIGINE DE L'AEROSOL	$n_0$	$d < 0.01 \mu\text{m}$	$d < 0.05 \mu\text{m}$	$d > 0.1 \mu\text{m}$
AUMOBILE	72 000	0.04	0.50	0.22
	50 000	0.09	0.53	0.20
CHEMINEE	38 000	0.25	0.74	0.07
	60 000	0.36	0.85	0.02



- a) { ● automobile 11/10/76 à 15h30  
 ▽ cheminée 28/11/76 à 14h04



- b) { ■ automobile 25/11/76 à 16h50  
 □ cheminée 29/11/76 à 16h46

Fig.VI-20: AEROSOL de COMBUSTION

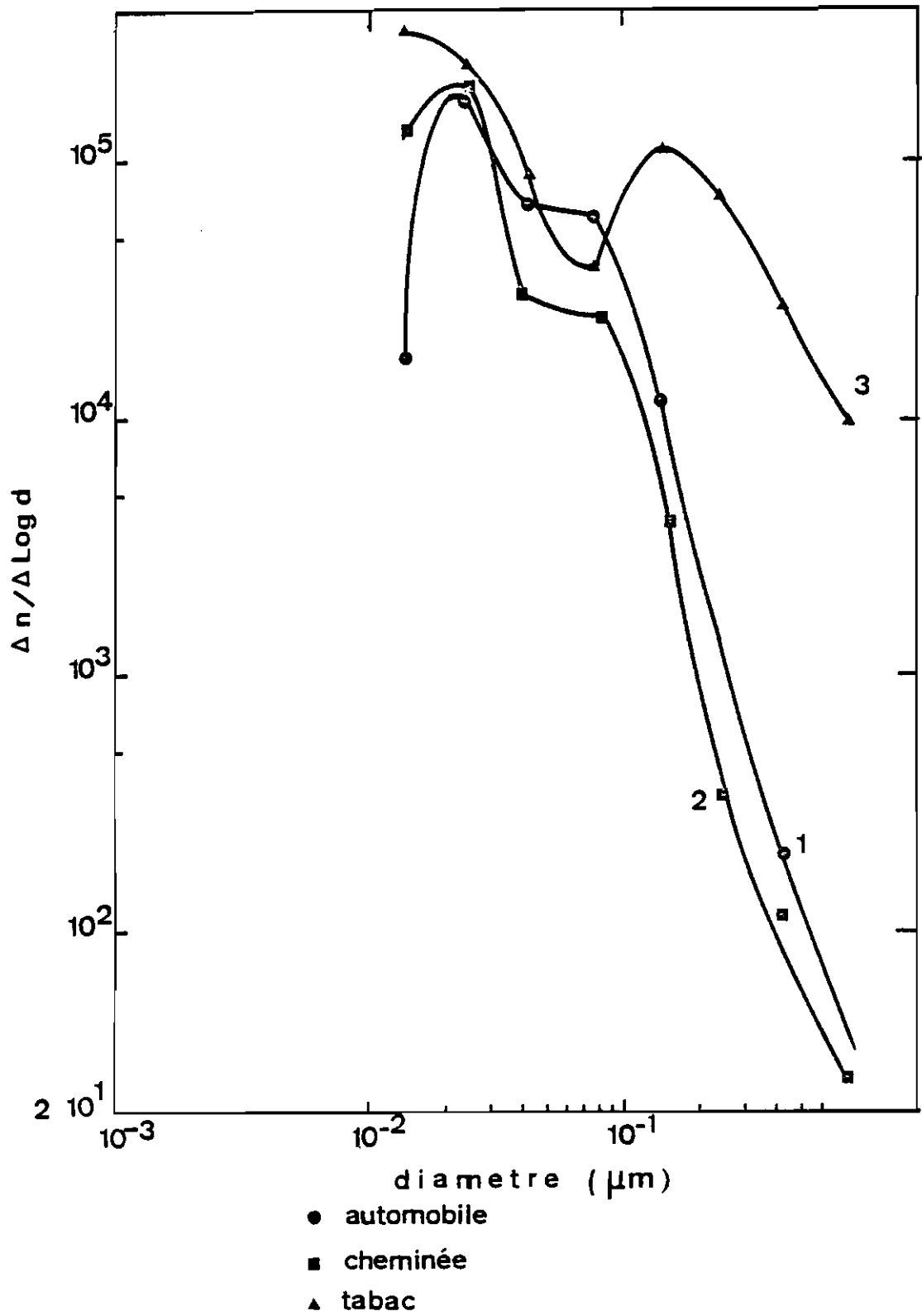


fig. VI-21 : aérosol de combustion (A·E·A·)

à travers le tuyau  $L_1$  jusqu'à l'entrée de la sphère. Dans le second cas la vitesse des fumées est plus faible, d'où une plus faible efficacité d'entraînement des grosses particules sur une distance qui, comme nous avons vu au paragraphe 3-2 ci-dessus, est égale à  $2 L_3$ , c'est-à-dire supérieure à  $3 L_1$ .

La courbe 3 (Fig. VI-21) représente la granulométrie d'une fumée de tabac au compteur électrique. Sur la même figure sont représentées les distributions obtenues, toujours à l'AEA, pour un gaz d'échappement automobile (courbe 1) et un gaz de cheminée (courbe 2). Ici aussi, les granulométries trouvées indiquent un maximum vers  $10^{-6}$  cm de rayon, la fumée de tabac semble contenir une plus forte proportion de grosses particules et donne une bimodalité bien nette.

L'accord est également bon (Fig. VI-20-a ci-dessus) entre AEA et batteries de diffusion dans le cas des cheminées ; mais il n'est pas aussi satisfaisant pour les gaz d'échappement qui contiennent un fort pourcentage de grosses particules ( $d > 10^{-5}$  cm).

A partir des trois exemples que nous venons d'exposer, nous pouvons donc dire que la combustion dans les chaufferies à mazout et les moteurs automobiles donne, comme la fumée de tabac, un aérosol dont la distribution est bimodale. La bimodalité observée presque systématiquement entre  $r = 10^{-7}$  cm et  $r = 3 \cdot 10^{-6}$  cm dans la granulométrie de l'aérosol atmosphérique en zone urbaine fortement polluée, serait donc imposée dès sa formation par la combustion des

matières organiques. Les processus photochimiques n'interviendraient alors que dans la modification du spectre, surtout dans le mode des fines particules ; ce qui expliquerait pourquoi, même dans la nuit, on peut obtenir des distributions bimodales.

En conclusion, les résultats obtenus dans les différents sites de mesure nous permettent de résumer sur la figure VI-22 la granulométrie de l'aérosol atmosphérique dans l'intervalle  $2 \cdot 10^{-7}$  et  $10^{-4}$  cm de diamètre :

a) en atmosphère non polluée, le spectre de dimensions de cet aérosol est unimodal, avec dans le cas de la zone côtière que nous avons étudiée, un rayon moyen de l'ordre de  $10^{-5}$  cm ; une création particulaire locale limitée dans le temps conduit à une bimodalité ( $r_1 \approx 10^{-7}$  cm,  $r_2 \approx 10^{-5}$  cm) qui tend rapidement à disparaître par coagulation dès que cesse la génération. Une production importante de fines particules peut également conduire à une distribution unimodale de diamètre moyen plus faible que celui de "l'aérosol de base" (Fig. VI-22, courbe 9).

b) en zone urbaine, la granulométrie est généralement bimodale ; dans les cas de forte pollution, les maxima sont ceux déjà créés directement à  $10^{-7}$  cm et  $10^{-6}$  cm par divers foyers de combustion (Fig. VI-22, courbe 10). Si la pollution et l'action photochimique sont faibles, ces maxima sont

placés à  $10^{-6}$  et  $5 \cdot 10^{-6}$  cm (Fig. VI-22, courbe 4) ; on peut alors considérer la distribution comme une combinaison de "l'aérosol de base " (courbe 1) et d'un aérosol de combustion (courbe 3), le maximum situé à  $10^{-7}$  cm ayant alors disparu par coagulation. Suivant l'importance de la pollution artificielle, on peut également avoir des distributions unimodales (Fig. VI-22, courbe 5) ou trimodales (courbe 8).

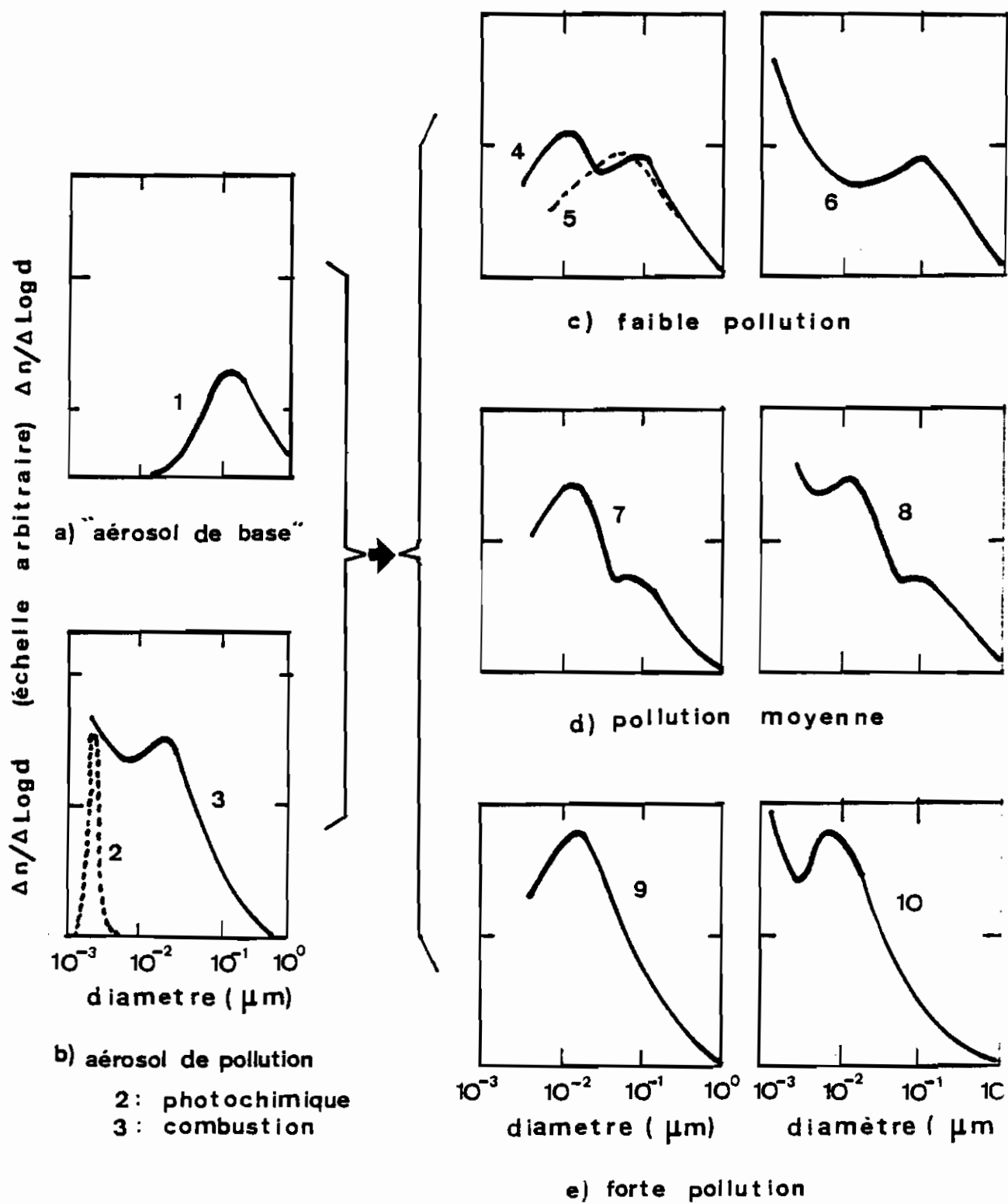


Fig. VI - 22 : DIFFERENTS SPECTRES ATMOSPHERIQUES



## CONCLUSION

Après avoir passé rapidement en revue différentes techniques d'étude du spectre de dimension d'un aérosol, nous avons testé plusieurs méthodes de détermination de la granulométrie : microscope électronique, comptage électrique et batteries de diffusion. Un examen critique de ces méthodes nous a permis de choisir les batteries de diffusion et le compteur électrique comme moyens d'étude.

Des anomalies dans la forme des distributions obtenues à partir des mesures aux batteries de diffusion nous ont d'abord amené à rechercher une amélioration de la méthode de MAIGNE. Une nouvelle méthode de détermination des granulométries d'aérosols par traitement des données des batteries de diffusion a ensuite été proposée. Dans cette méthode, on part de l'équation de TWOMEY ; on détermine la fonction de distribution  $f(r)$  par intégration numérique et on en déduit les valeurs théoriques  $(n/n_0)_{th}$  des rapports des concentrations  $n_0$  et  $n$  à l'entrée et à la sortie des batteries telles que l'écart :

$$\left(\frac{n}{n_0}\right)_{exp} - \left(\frac{n}{n_0}\right)_{th}$$

soit minimum. La minimisation est effectuée par la méthode des gradients conjugués. Le test de cette nouvelle méthode de calcul avec un aérosol d'uranine, puis par simulation théorique de granulométries unimodales et bimodales nous a montré qu'elle est satisfaisante dans les deux cas.

La nouvelle méthode d'intégration a, comme la méthode de MAIGNE, l'inconvénient de nécessiter un temps de calcul d'autant plus long que les conditions de départ des approximations sont loin des conditions réelles dans l'aérosol étudié. Dans les deux cas, la précision des résultats diminue quand la taille des particules augmente puisque leur coefficient de diffusion variant peu avec leur grosseur, leur sélectivité diminue. Notre méthode a cependant l'avantage sur celle de MAIGNE de permettre une extrapolation jusqu'au rayon critique et au-delà de  $2 \cdot 10^{-5}$  cm de diamètre ; elle permet également de supprimer les oscillations en fin de spectre et les discontinuités constatées au passage d'un mode à l'autre dans la seconde méthode ; enfin, elle conduit nécessairement à une probabilité unité d'explication du spectre quand la limite supérieure ( $r_m$ ) est suffisamment grande.

La persistance des anomalies de distribution (faible proportion des fines particules) qui ne peuvent être expliquées ni par les méthodes d'intégration, ni - comme nous l'avons montré à partir des calculs théoriques - par les pertes par diffusion-coagulation dans les conduites ou la sphère de stockage, nous a conduit à la mise en évidence des pertes de comptage des compteurs de noyaux de condensa-

tion. La réalité de ces pertes, qui dépendent d'ailleurs de la taille et de la nature des particules d'aérosols, a été confirmée d'abord par un contrôle théorique et expérimental du générateur d'aérosols utilisé, puis par l'étude de la réponse du CNC GE en fonction de sa détente.

En utilisant une courbe d'étalonnage du CNC en fonction des pertes de comptage, nous avons introduit dans les granulométries une correction de comptage en fonction du rayon des particules. Les anomalies n'existent plus dans les spectres ainsi corrigés.

L'étude de l'aérosol atmosphérique dans différents sites de mesure nous a montré que :

1°) dans l'intervalle de diamètre compris entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$  cm, on obtient un assez bon accord entre l'analyseur électrique d'aérosols et notre méthode ; mais cet accord, presque parfait pour des distributions unimodales, est moins satisfaisant quand il existe plusieurs modes dans cette région, ou quand l'aérosol contient un fort pourcentage de particules de diamètre supérieur à  $10^{-5}$  cm. Pour  $d < 10^{-6}$  cm, l'analyseur électrique ne donne que des valeurs indicatives, peu stables et peu fiables. Au-dessus de  $10^{-5}$  cm, l'AEA ne permet pas, comme nous l'avons vu avec les exemples de Guisseny par temps brumeux, de suivre les déplacements du maximum dans cette région.

2°) En atmosphère relativement non polluée, la distribution dimensionnelle de l'aérosol est unimodale ; une pollution particulaire locale et plus ou moins instantanée conduit à une bimodalité, qui tend rapidement à disparaître dès que cesse la production de noyaux.

3°) Dans une atmosphère fortement polluée (zone urbaine par exemple), la granulométrie est généralement bimodale, avec les maxima respectifs dans les intervalles  $2 \cdot 10^{-7} - 10^{-6}$  cm pour les fines particules et  $2 \cdot 10^{-6} - 10^{-5}$  cm pour les plus grosses. Une forte production de très fines particules ( $r \approx 10^{-7}$  cm) tend à faire disparaître le maximum situé vers  $10^{-5}$  cm au bénéfice de celui situé vers  $10^{-6}$  cm.

La persistance de fortes proportions de fines particules et d'une bimodalité à Paris, souvent même pendant la nuit, nous a amené à douter de son origine purement photochimique et à étudier des aérosols de combustion. Les distributions alors obtenues pour un gaz d'échappement automobile, un gaz de cheminée domestique et une fumée de tabac sont bimodales, les deux maxima étant situés vers  $10^{-7}$  cm et  $10^{-6}$  cm de rayon.

En conclusion, la forme de la granulométrie de l'aérosol atmosphérique en zone urbaine serait imposée dès sa formation. Les processus photochimiques et la coagulation n'auraient alors pour effet qu'une modification de cette distribution. Pour compléter cette étude il serait souhaitable de :

- rechercher les causes des pertes de comptage des compteurs de noyaux de condensation ; dans ce cadre, on peut envisager une étude thermodynamique et statistique de la croissance des noyaux dans une atmosphère sursaturée,

- déterminer la nature des particules en fonction de leur taille;

- utiliser des micro-batteries de diffusion qui permettent d'effectuer les mesures pendant des intervalles de temps courts;

- améliorer la méthode de calcul pour la rendre plus performante et de coût moindre afin de pouvoir faire des études statistiques de la pollution particulaire d'un site donné.

## ANNEXES

### Annexe 1 : Vitesses thermophorétiques.

#### 1° Domaines moléculaires (nombre de KNUDSEN $\lambda/r > 10$ ).

Pour des particules supposées sphériques et de rayon  $r$  petit par rapport au libre parcours moyen  $\lambda$  des "molécules d'air", on montre que (29, 107) la vitesse  $v_t$  de déplacement de ces particules vers la région de faible température est :

$$\underline{v_t} = \frac{\lambda}{5 \left(1 + \pi \frac{K_r}{K_g}\right)} \cdot \frac{K_g}{P} \cdot \underline{\nabla T} \quad (1)$$

où

$P$  est la pression atmosphérique

$K_g$  la conductivité thermique et

$K_r$  le coefficient de réflexion thermique

On constate que cette vitesse est indépendante de  $r$  et que, pour  $P$  et  $K_r$  donnés, elle n'est fonction que du gradient thermique. Nous sommes dans le domaine  $\frac{\lambda}{r} > 10$ , c'est-à-dire  $r < \frac{\lambda}{10}$ . Or  $\lambda$  est de l'ordre de  $6 \cdot 10^{-6}$  cm ; cette théorie est donc valable pour  $r \leq 6 \cdot 10^{-7}$  cm. En régime intermédiaire ( $\frac{\lambda}{r} \approx 1$ ), la théorie est plus complexe et encore incomplète.

2°) Grosses particules.

Dans le domaine des tailles importantes ( $\lambda/r \ll 1$ ), la théorie se complique et la vitesse  $v_t$  dépend entre autre de la conductivité thermique  $K_p$  des particules.

La formule d'EPSTEIN :

$$\underline{v_t} = \frac{1}{5} \frac{2K_g}{2K_g + K_p} \cdot \frac{K_g}{p} \cdot \underline{\nabla T} \quad (2)$$

ne rend bien compte de la thermophorèse que pour  $K_p < K_g < 10$ .

La théorie refaite par BROCK (13) pour  $K_g$  plus grand donne :

$$v_t = \frac{1}{5} \frac{\left\{ 1 + A \frac{\lambda}{r} + B \frac{\lambda}{r} \exp \left( - C \frac{\lambda}{r} \right) \right\} \cdot 2(K_g + C_t \frac{\lambda}{r} K_p)}{(1 + 3 C_m \frac{\lambda}{r}) (2K_g + K_p + 2C_t \frac{\lambda}{r} K_p)} \cdot \frac{K_g}{p} \cdot \nabla T \quad (3)$$

où

A, B, C sont les constantes de MILLIKAN (69)

$$A = C_m = 1.29$$

$$B = 0.42$$

$$C = 0.87$$

$$C_t = \frac{15}{8} \cdot \frac{2 - K_r}{K_r}$$

Quand  $K_p \rightarrow \infty$ ,

$$v_t \rightarrow \frac{2}{5} C_t \frac{K_g}{p} \cdot \frac{\lambda}{r} \cdot \underline{\nabla T}$$

Ici,  $v_t$  est de toutes les façons fonction de  $r$  ; au cours des prélèvements l'efficacité de captation dépendra donc également de la taille  $r$  des particules.

Par une approche hydrodynamique, DERJAGUIN et BAKANOV (26) aboutissent à une vitesse indépendante du rayon  $r$  :

$$v_t = \frac{2}{15} \cdot \frac{8 K_g + K_p}{2 K_g + K_p} \cdot \frac{K_p}{p} \cdot \nabla T \quad (4)$$

Mais, à partir des considérations thermodynamiques, DERJAGUIN et coll. (27, 28) trouvent une expression qui, comme l'équation 3, dépend de  $r$ .

Les vitesses thermophériques obtenues pour les grosses particules varient donc avec le rayon de celles-ci. Par ailleurs, ces vitesses sont bien plus faibles que celles qu'on trouve dans le domaine moléculaire. Ceci signifie que, sur les surfaces collectrices (grilles) du précipitateur thermique, on aura, superposée à la granulométrie réelle de l'aérosol, une distribution spatiale due à l'efficacité de captation. Pour obtenir des prélèvements plus uniformes, on peut soumettre la surface collectrice à un mouvement permanent.

## Annexe 2 : Efficacité de captation.

### 1°) Impaction.

$$E_I = \frac{2 x_1}{1 + t_1} - \frac{x_1^2}{(1+t_1)^2} \quad (5)$$



où

$$x_1 = 2 \cdot y_1 \cdot t_1^{1/2} - 2 y_1^2 t_1 \left[ 1 - \exp \left( -1 / (y_1 \cdot t_1)^{1/2} \right) \right]$$

$t_1$  est défini à partir de la porosité  $p_1$  de la membrane (93)

$$t_1 = \frac{p_1^{1/2}}{1 + p_1^{1/2}}$$

$y_1$  est un paramètre d'inertie appelé nombre de STOKES. Si  $v_1$  est la vitesse d'une particule de masse  $m$  et de rayon  $r$ ,  $\eta$  le coefficient de viscosité dynamique de l'air et  $r_1$  le rayon des pores de la membrane, on a :

$$y_1 = \frac{m v_1}{6 \pi \eta r_1} \quad (6)$$

ce qui peut s'écrire :

$$y_1 = \frac{2 \rho Q r^2}{9 \pi r_1^3}$$

avec :

$\rho$  = masse volumique des particules

$Q$  = débit de l'air à travers la membrane

Au cours de la filtration, le rayon  $r_1$  des pores varie à cause de l'accumulation des particules et sa valeur  $r_{1t}$  au temps  $t$  est donnée par (95)

- Pour des particules liquides

$$r_{1t} = \left( r_1^2 - 1.33 r^3 n t \frac{Q}{n_1 e_1} \right)^{1/2}$$

- Pour un aérosol solide

$$r_{1t} = \left( r_1^2 - \frac{2r_1}{r_1 + ar} \cdot r^3 \text{ nt } \frac{Q}{n_1 e_1} \right)^{\frac{1}{2}}$$

où

$e_1$  est l'épaisseur de la membrane

$n$  la concentration de l'aérosol

$n_1$  le nombre de pores par  $\text{cm}^2$  et

$a$  un coefficient d'accumulation déterminé empiriquement (53, 95, 110)

Pour déterminer de façon rigoureuse le nombre de STOKES, on doit donc tenir compte de cette variation de  $r_1$  en fonction du temps.

### 2°) Interception directe.

L'efficacité de captation par interception directe est donnée par une formule de SPURNY (94).

$$E_r = \left( 2 - \frac{r}{r_1} \right) \frac{r}{r_1} \quad (7)$$

### 3°) Diffusion.

Les pores peuvent être considérés comme des micro-batteries de diffusion, la longueur de chacune d'elles étant égale à l'épaisseur  $e_1$  de la membrane. Soit  $n_1$  le nombre de pores par  $\text{cm}^2$ .

$$n_1 = \frac{p_{o1}}{r_1^2}$$

où  $p_{o1}$  est toujours la porosité.

La longueur  $l_1$  de la batterie équivalente à la membrane est donc :

$$l_1 = n_1 e_1 S_1$$

avec :

$S_1$  = surface de la membrane de diamètre  $d_1$

d'où :

$$l_1 = \frac{p_{o1}}{r_1^2} \cdot e_1 \cdot \frac{d_1^2}{4} \quad (8)$$

L'efficacité de captation par diffusion peut alors se déterminer à partir des équations de diffusion (42) :

$$E_D = 1 - \frac{n}{n_o}$$

$$E_D = 1 - \sum_i a_i \exp(-b_i \pi l_1 D/Q) \quad (9)$$

où

$n_o$  est la concentration de l'aérosol à l'arrivée sur le filtre,

$n$  la concentration moyenne de l'aérosol à la sortie du filtre ,

D le coefficient de diffusion des particules piégées,  $a_i$  et  $b_i$ , constantes sans dimension, sont les coefficients de TWONEY (103).

On peut ensuite déduire, de l'équation semi-empirique de SPURNY (91), l'efficacité totale du filtre :

$$E = E_i + (1-E_c) E_D + E_R \theta^{(1-N_S)} \quad (10)$$

où  $\theta$  est voisin de 0.6 et  $N_S = r/r_1$ .

Pour un rayon  $r$  donné des particules, l'efficacité  $E$  varie avec le débit  $Q$  et atteint un minimum qui dépend de  $R$ .

FBLD SE 2.0

MAIN

DATE = 77348

12/21/28

```

C   PROGRAMME "MAIN"
COMMON /INTEG/N,N10,N11,N20,N21,N40,PAS,XP
COMMON /VAR/P,LIMIT
COMMON /XYZ/KOUNT,NXY
COMMON /NAT/NAT
DIMENSION XR(30),XNTR(30),QLMIN(30)
DIMENSION P(5),G(5),WSXH(30)
DIMENSION P1(5)

C
EXTERNAL EQSP
M = 3
XP = .6
N10=7
N11=N10+1
N20=N10*N10
N21=N10*N11
CALL ERASET(207,256,-1,1,0)
CALL ERASET(208,256,-1,1,0)
10 CALL DQNHIE
DO 15 I=1,5
15 P1(I)=P(I)
EPS=1.E-7
IF(NAT.NE.1) GOTO 50

C
GOTO 60
30 CALL FMCG(EQSP,5,P,V,G,0.,EPS,LIMIT,IER,WSXH)
40 CALL VEGS(P)
P(1)=EXP(P(1))
P(4)=EXP(P(4))
P1(1)=EXP(P1(1))
P1(4)=EXP(P1(4))
WRITE(6,650) IER,KOUNT
WRITE(6,625) P,P1
WRITE(6,626) EPS,LIMIT
IF(NAT.NE.1) GOTO 30
WRITE(6,628)
GOTO 40
30 WRITE(6,640)
625 FORMAT(//,' PF=',5E15.3/,' PI=',5E15.3)
626 FORMAT(//,'SH EPS=E6.1,/,7H LIMIT=I5,/)
63 FORMAT(////' E Q S A '/')
640 FORMAT(////' E Q S R '/')
650 FORMAT(//,' QUALITE DE LA MINIMISATION =',I5,10X,' NOMBRE D,ITERAT
IONS =',I5)
40 GOTO 10
20 STOP
END

```

```

SUBROUTINE DONNEE
REAL LONG,LARG
DIMENSION XM(30),XNTH(30),QLMIN(30),LIEU(7),P(5)
COMMON /INTEG/M,N10,N11,N20,N21,N40,PAS,XP
COMMON /MESURE/NMES,XM,QLMIN,XNTH,NOINIT
COMMON /VAR/P,LIMIT
COMMON /CTE/HA1,HA2,HA3,HB1,HB2,HB3,CD1,CD2,CD3,HA4,HA5,HA6,HA7,
1HA8,HB4,HB5,HB6,HR7,HB8
COMMON/NATF/VAT
NAMelist /BAT/LONG,LARG,NBP,EPAIS,TYPE
DATA RECT,CIRC/'RECT','CIRC'/
DATA LONG,LARG,NBP,EPAIS,TYPE/35.,10.,200.,.03,'RECT'/

```

C

```

1110 FORMAT(E6.2,2F5.2,E6.2,F5.2,49X)
1120 FORMAT(3I3,I4,I7,F5.1,58X)
1130 FORMAT(10F8.2)
1140 FORMAT(10F8.5)
1000 FORMAT(

```

```

1 /, ' *****', //, 10X,
2 ' .....',F10.2,/10X,
3 ' .....',F10.2,/10X,
4 ' .....',I7,/10X,
5 ' .....',F11.3,/10X,
6 /, ' *****', //, 10X,
7 ' .....',I7,/10X,
8 ' .....',I7,/10X,
9 ' .....',F10.2,///
A 30(10X,I2,4X,'DEBIT',F7.2,' N/NO ',F7.4//)

```

```

1010 FORMAT(

```

```

1 /, ' *****', //, 10X,
2 ' .....',F10.2,/10X,
3 ' .....',F11.3,/10X,
4 ' .....',I7,///10X,
5 /, ' *****', //, 10X,
6 ' .....',I7,/10X,
7 ' .....',I7,/10X,
8 ' .....',F10.2,///
9 30(10X,I2,4X,'DEBIT',F7.2,' N/NO ',F7.4//)

```

```

1020 FORMAT(/////.' PLUS DE DONNEES . TRAVAIL TERMINE ')

```

```

1040 FORMAT(20A4)

```

```

1050 FORMAT('1',20X,'EXPERIENCE FAITE A ',3A4,' LE ',2A4,' A ',2A4,')
1, ' *****', //, 10X,

```

C

C

C

```

READ(S,BAT,END=60)
READ(S,1040,END=60) LIEU
READ(S,1110) P
READ(S,1120) NAT,N40,NMES,LIMIT,NOINIT,TEMP
READ(S,1130) (QLMIN(I),I=1,NMES)
READ(S,1140) (XM(I),I=1,NMES)

```

C

C

C

```

P(1)=ALOG(P(1))
P(4)=ALOG(P(4))
TK=273.15+TEMP
RATM=1.01325E6
PO= 5.622379E-12*(TK+110.4)/SQRT(TK)

```

C

EASE 2.0

DO DEF

DATE = 77348

12/21/28

```

AL = .031012*TK**2/(PATK*(110.4+TK))
AL = 3.9573F-14*TK
CD1 = 1.234*AL
CD2 = 0.414*AL
CD3 = -.375/AL

```

```

*****
*****

```

```

*****
*****

```

```

WRITE (6,1050) LIEN
IF (TYPE.EQ.CIRC) GOTO 30
IF (TYPE.NE.RECT) GOTO 50

```

```
*****
```

```
*****
```

```

WRITE (6,1000) LONG,LARG,NBP,EPAIS,NMES,NOINIT,TEMP,
1 (I,QLMIN(I),XN(I),I=1,NMES)
DO 20 I=1,NMES,1
20 QLMIN(I)=QLMIN(I)/(12.E-2*NBP*(LARG*EPAIS)
H(P,U)=HA#/SQRT(2*PI) * EXP(HR#*(1+CD1/R+(CD2/R)*EXP(CD3*P)))/(R*U)
HA1=.3631791
HA2=.21202E-1
HA3=.60954E-2
HA4=.27162E-2
HA5=.15119E-2
HA6=.11262E-2
HA7=.62394E-3
HA8=.44402E-3
X =LONG*X0/EPAIS**2
HR1=-1.855175*X
HR2=-21.43630*X
HR3=-62.04000*X
HR4=-124.5391*X
HR5=-208.0905*X
HR6=-312.9785*X
HR7=-439.20*X
HR8=-566.755*X
GOTO 50

```

```
*****
```

```
*****
```

```

30 WRITE (6,1010) LONG,LARG,NBP,NMES,NOINIT,TEMP,
1 (I,QLMIN(I),XN(I),I=1,NMES)
DO 40 I=1,NMES,1
40 QLMIN(I)=QLMIN(I)/(12.E-2*NBP*(LARG*EPAIS)
H(P,U)=HA#/SQRT(2*PI) * EXP(HR#*(1+CD1/R+(CD2/R)*EXP(CD3*P)))/(R*U)
HA1=.3290485E-1
HA2=.3890485E-1
HA3=.1295765E-1
X =LONG*X0/LARG**2
HR1=-03.65680*X
HR2=-22.30500*X
HR3=-56.90500*X

```

```
50 RETURN
```

```
60 WRITE (6,1020)
```

```
STOP
```

```
END
```

RELEASE 2.1

INTG

DATE = 77348

12/21/25

C  
C  
C  
C  
C  
C  
C

SUBROUTINE INTG(Y,SY)  
\*\*\*\*\*

COMMON /INTG/M,N10,N11,N20,N21,N40,PAS,XP

DIMENSION Y(21,3),SY(3)

DO 30 J=1,M

  S=0.

  DO 20 I=1,N20,2

20      S=S+2.\*Y(I+1,J)+Y(I,J)

30      SY(J)=(2.\*S-Y(1,J)+Y(N21,J))\*PAS/3.

  RETURN

  END



RELEASE 2.0

VEVS

DATE = 77348

12/21/78

C  
C  
C  
C  
C

SUBROUTINE VEVS(P)

\*\*\*\*\*

```

COMMON /INTEG/H,N10,N11,N20,N21,N40,PAS,XP
COMMON /CTE/HA1,HA2,HA3,HB1,HB2,HB3,CD1,CD2,CD3,HA4,HA5,HA6,HA7,
1HA8,HB4,HB5,HB6,HB7,HB8
COMMON /MESURE/NMES,XN,U,XNTH,NOINIT
DIMENSION XN(30),XNTH(30),U(30),RR(39),Y(21),Z(21),P(5)
DIMENSION PC(39),PC4(39),T10(39),T20(39),T30(39),T40(39),T50(39),
1 T60(39),T70(39),PZ(39)
DATA RR/.25E-7,.4E-7,.6E-7,.8E-7,.1E-6,.11E-6,.115E-6,.12E-6,
1 .13E-6,.14E-6,.145E-6,.16E-6,.18E-6,.2E-6,.235E-6,.3E-6,
2 .335E-6,.39E-6,.49E-6,.68E-6,.97E-6,.156E-5,.225E-5,
3 .2965E-5,.37E-5,.5E-5,.6E-5,.7E-5,.8E-5,.1E-4,.2E-4/
DATA PC/.02,.02,.02,.02,.02,.04,.06,.075,.09,.12,.15,.19,.22,.25,
1 .29,.31,.37,.42,.48,.58,.67,.74,.78,.8,.82,.83,.84,.86,
2 .88,.91,.95,.999,1.,1.,1.,1.,1.,1.,1.,1./
DATA PC4/.14,.14,.14,.14,.14,.15,.18,.21,.22,.25,.29,.33,.36,.39,
1 .42,.45,.51,.56,.61,.68,.75,.78,.81,.83,.85,.86,.88,.9,
2 .92,.95,.999,1.,1.,1.,1.,1.,1.,1.,1.,1.,1./

```

C  
C

```

1000 FORMAT(//,
1 ' ',//,
2 ' NO MANIP. N/NO EXP N/NO TH ECART EN %',//)
1010 FORMAT(//,10X,' ',//,10X,' *****',//,6X,
1 '-----',
2 ' ',//,6X,' ',17X,' ',15X,' ',17X,' ',16X,' ',
316X,' ',//,6X
4 ' DIAMETRES I DF/DLOGR I DN/DLOGR I F
5 I N I//,6X,' ',17X,' ',15X,' ',17X,' ',16X,' ',16
6X' '//,6X'-----',
7 ' ',//,6X,' ',17X,' ',15X,' ',17X,' ',
816X,' ',16X,' ')
1020 FORMAT(' ERREUR I SIGMA < 01 CORRECTION STANTARD,SIGMA=-SIGMA',/
,' SIGMA=',F10.5,' P= ',5F10.5)
1030 FORMAT(10X,I9,2X,F12.5,2X,F12.5,8X,F10.5)
1040 FORMAT(6X,' ',4X,E10.3,3X,' ',F11.5,4X,' ',F10.2,7X,' ',F12.5,4X,
1 ' ',F12.1,4X,' ')
1050 FORMAT(6X,' ',17X,' ',15X,' ',17X,' ',16X,' ',16X,' '//,6X,'-----',
1 '-----',
2 ' ',//,10X,' '
3 10X,' F(R) = A*EXP( -(LOG(R)-LOG(X1))**2/(2*SIGMA1**2) ) + ',
4 '(1-A)*EXP( -(LOG(R)-LOG(X2))**2/(2*SIGMA2**2) )',//,
5 '/',10X,' A=',E15.6,' X1=',F15.6,' SIGMA1=',E15.6,/,
6 10X,' 1-A=',E15.6,' X2=',E15.6,' SIGMA2=',E15.6)
1060 FORMAT(///,20X,' ',//)
1070 FORMAT(//,6X,
1 '-----',
2 ' ',//,6X,' ',17X,' ',15X,' ',17X,' ',16X,' ',
316X,' ',//,6X

```

IV G1 RELEASE 2.0

REFS

DATE = 77348

12/21/20

```

4*1 DIAMETRES I DN/LOGR I DN/LOGR CORRIGE I
5 I CORRIGE I /,6X,I',17X,I',15X,I',17X,I',16X,I'
6X'I /,6X'-----
7-----' /,6X,I',17X,I',15X,I',17X,I'
816X,I',16X,I')
1080 FORMAT(//I',/)
1090 FORMAT(6X,I',17X,I',15X,I',17X,I',16X,I',16X,I',/6X,'+---
1-----
0-----+')
1140 FORMAT(6X,I',4X,E10.3,3X,I',F11.2,4X,I',F10.2,7X,I',F12.1,4
1'I',F12.1,4X,I')
1150 FORMAT(///)
1160 FORMAT(//,6X,
1'-----
2-----',/6X,I',17X,I',15X,I',17X,I',16X,I'
316X,I',/6X
4*1 DIAMETRES I PROBA I PROBA CORRIGE I DN/
5 I DN/LOG CORRIGE I /,6X,I',17X,I',15X,I',17X,I',16X,I'
6X'I /,6X'-----
7-----' /,6X,I',17X,I',15X,I',17X,I'
816X,I',16X,I')
1170 FORMAT(6X,I',4X,E10.3,3X,I',E12.5,3X,I',E12.5,5X,I',E12.5,4
1'I',E12.5,4X,I')

```

C  
C  
C  
C  
C

```

SIGMA1=P(2)
IF (SIGMA1.GT.0.)GOTO 10
P(2) =-SIGMA1
WRITE(6,1020) SIGMA1,P
SIGMA1=-SIGMA1
10 SIGMA2=P(5)
IF (SIGMA2.GT.0.) GOTO 20
P(5) =-SIGMA2
WRITE(6,1020) SIGMA2,P
SIGMA2=-SIGMA2
20 A2 =P(3)
X1 =P(1)
X2 =P(4)
A1 =1.-A2
PAS1 =XP*SIGMA1
PAS2 =XP*SIGMA2
WRITE(6,1000)
00 90 INNES=1,NNES
XU=U(INNES)

```

C

\*\*\*\*\*

```

00 70 I=1,N21
S1=0.
S2=0.
T1=(I-N11)*PAS1
P1=EXP(X1+SIGMA1*T1)
D1=(1.+(C01+C02*EXP(C03*P1)))/P1/(S1*XU)
IF (P1.LT..1E-7) GOTO 40
IF (P1.GT.1. ) GOTO 40
IF (D1.GT.1.55) GOTO 30
S1=S1+2*EXP(-P2*P1)+43*EXP(-P3*P1)

```

RELEASE 2.0

VFDS

DATE = 77348

12/21/28

```

S1=S1+A24*EXP(-A40*T1)+A35*EXP(-A85*D1)+A46*EXP(-A86*D1)
S1=S1+A47*EXP(-A47*D1)+A48*EXP(-A88*D1)
30 S1=S1+A41*EXP(-A41*D1)
40 Y(I)=S1*EXP(-.5*TI*T1)
T2=(I-N11)*PAS2
P2=EXP(X2+SIGMA2*T2)
D2=(1.+(C01+C12*EXP(C03*D2))/P2)/(R2*XU)
IF (R2.LT..1E-7) GOTO 40
IF (P2.GT.1.) GOTO 60
IF (D2.GT.1.E5) GOTO 50
S2=A42*EXP(-A42*D2)+A43*EXP(-A83*D2)
S2=S2+A44*EXP(-A44*D2)+A45*EXP(-A85*D2)+A46*EXP(-A86*D2)
S2=S2+A47*EXP(-A47*D2)+A48*EXP(-A88*D2)
50 S2=S2+A41*EXP(-A41*D2)
60 Z(I)=S2*EXP(-.5*T2*T2)
70 CONTINUE

```

C

```

S1=0.
S2=0.
DO 80 J=1,N20,2
S1=S1+2.*Y(J+1)+Y(J)
80 S2=S2+2.*Z(J+1)+Z(J)
S1=(S1+S1+Y(N21)-Y(1))*PAS1/3.
S2=A2*(S2+S2+Z(N21)-Z(1))*PAS2/3.+A1*S1
ECA=(XN(INMES)-S2)/XN(INMES)
ECA=100.*ECA
90 WRITE(6,1030) INMES,XN(INMES),S2,ECA

```

C

```

WRITE(6,1010)
DO 100 I=1,N40
R2=RR(I)
P1=ALOG(P2)
R2=R2+R2
T1=(R1-X1)/(SIGMA1*1.414213)
T2=(R1-X2)/(SIGMA2*1.414213)
S1=(A1/SIGMA1*EXP(-T1*T1)+A2/SIGMA2*EXP(-T2*T2))*0.3989423
S2=.5*(A1*ERF(T1)+A2*ERF(T2))*0.5
T1=NOINIT*S1
T2=NOINIT*S2
T10(I)=T1
T20(I)=T2
T30(I)=S2
100 WRITE(6,1040) P2,S1,T1,S2,T2

```

:

:

:

:

:

:

:

:

:

:

:

:

:

:

```

X1=EXP(X1)
X2=EXP(X2)
WRITE(6,1050) A1,X1,SIGMA1,A2,X2,SIGMA2

```

```

135=0
DO 135 I=1,N40
135 PZ(I)=PC(I)
WRITE(6,1360)
220 WRITE(6,1370)
DO 110 I=1,N40

```

RELEASE 2.0

VEOS

DATE = 77348

12/21/28

```

P=RR(I)
R=R+R
T1=T10(I)/PZ(I)
IF (I.GT.1) GOTO 95
T2=T20(I)/PZ(I)
T40(I)=T30(I)
T50(I)=T2
T60(I)=T20(I)/(P/2)
T70(I)=T2/(P/2)
GOTO 120
95 J=I-1
T2=T2+((T20(I)-T20(J))/PZ(I))
T40(I)=T30(I)-T30(J)
T50(I)=T2
T60(I)=(T20(I)-T20(J))/(2*(P*(I)-RR(J)))
T70(I)=(T20(I)-T20(J))/(2*(P*(I)-RR(J))*PZ(I))
120 T2=ABS(T2)
T40(I)=ABS(T40(I))
T50(I)=ABS(T50(I))
T50(I)=ABS(T50(I))
T70(I)=ABS(T70(I))
110 WRITE(6,1140) R,T10(I),T1,T20(I),T2
WRITE(6,1090)
WRITE(6,1150)
WRITE(6,1160)
T2=T20(N40)
DO 140 I=1,N40
R=RR(I)
R=R+R
IF (I.GT.1) GOTO 130
T50(I)=T50(I)/T2
GOTO 140
130 J=I-1
T50(I)=ABS((T50(I)-T50(J))/T2)
T50(I)=T50(I)-T50(J)
T60(I)=1.E-4*T50(I)/NOINIT
T70(I)=1.E-4*T70(I)/NOINIT
140 WRITE(6,1170)R,T40(I),T50(I),T60(I),T70(I)
WRITE(6,1090)
N35=N35+1
IF(N35.GT.1) GOTO 200
DO 210 I=1,N40
210 PZ(I)=PCM(I)
WRITE(6,1090)
GOTO 220
200 RETURN
END

```

G1 RELEASE 2.0

FMCG

DATE = 7734H

12/21/28

```

SUBROUTINE FMCG(FUNCT,N,X,F,G,EST,EPS,LIMIT,IER,H)
C
C
C
C *****
C
COMMON/XYZ/KOUNT,N,XY
DIMENSION X(1),G(1),H(1)
C
C
CALL FUNCT(N,X,F,G)
KOUNT=0
IER=0
N1=N+1
1 DO 43 II=1,N1
KOUNT=KOUNT+1
OLOG=F
GNRM=0.
DO 2 J=1,N
2 GNRM=GNRM+G(J)*G(J)
IF (GNRM) 45,46,3
3 IF (II-1) 4,4,6
4 DO 5 J=1,N
5 H(J)=-G(J)
GO TO 8
C
C
C
C
6 AMBDA=GNRM/OLOG.
DO 7 J=1,N
7 H(J)=AMBDA*H(J)-G(J)
8 DY=0.
HNRM=0.
DO 9 J=1,N
K=J+1
H(K)=X(J)
HNRM=HNRM+ABS(H(J))
9 DY=DY+H(J)*G(J)
IF (DY) 10,42,42
10 SNRM=1./HNRM
C
C
C
FY=F
ALFA=2.*(EST-F)/DY
AMBDA=SNRM*
IF (ALFA) 13,13,11
11 IF (ALFA-AMBDA) 12,13,13
12 AMBDA=ALFA
13 ALFA=0.
14 FX=FY
DX=DY
DO 15 I=1,N
15 X(I)=X(I)+AMBDA*H(I)
CALL FUNCT(N,X,F,G)

```

GRTRAN IV G1 RELEASE 2.0

FINCG

DATE = 77348

127

```

0096      35 IF (FY=F) 37,36,37
0097      36 IF (DY=0ALFA) 37,35,37
0098      37 FY=F
0099          DY=0ALFA
0100          ANO0A=4*ROA-ALFA
0101          GO TO 29
0102      38 IF (OLDF=F+EPS) 19,25,39
0103      39 OLDG=GNP 1
0104          T=0.
0105          DO 40 J=1,N
0106              K=J+N
0107              H(K)=X(J)-H(K)
0108      40 T=T+ABS(H(K))
0109          IF (KOUNT=N1) 42,41,41
0110      41 IF (T=EPS) 45,45,42
0111      42 IF (KOUNT=LIMIT) 43,44,44
0112      43 IER=0
0113          GO TO 1
0114      44 IER=1
0115          IF (GNRM=EPS) 46,46,47
0116      45 IF (GNRM=EPS) 46,46,25
0117      46 IER=0
0118      47 RETURN
0119          END

```

## BIBLIOGRAPHIE

- 1) G. ARNAUD, J. BRICARD, S. FONGANG, G. MADELAINE, P. ZETTWOOG (1976)  
"Un aspect de la granulométrie de l'aérosol atmosphérique"  
(Communication personnelle).
  
- 2) F.S. BECKMAN (1965)  
"Résolution des systèmes linéaires par la méthode du gradient  
conjugué"  
Méthodes mathématiques pour calculateurs arithmétiques  
(A. Falston et H.S. Wilf, Eds.) Dunod, Paris.
  
- 3) Y. BELOT, T. MARINI (1974)  
"Distribution des éléments chimiques dans les poussières de  
la ville de Paris"  
Pollution atmosphérique, 63, 327-334.
  
- 4) I.H., Jr. BLIFFORD and L.D. RINGER (1969)  
"The size and number distribution of aerosols in continental  
troposphere"  
J. Atm. Sciences, 26, 716-726.
  
- 5) I.H., Jr., BLIFFORD (1970)  
"Tropospheric aerosols"  
J. Geophys. Res., 75, 15, 3099-3103.

- 6) F. BILLARD, J. BRICARD, M. CABANE, G. MADELAINE (1967)  
"Etude des noyaux de condensation qui se forment dans l'obscurité  
et sous l'action de la lumière, dans l'air exempt d'aérosols"  
Comptes rendus de l'Académie des Sciences Paris, 265, 1173-1176.
- 7) BOURBIGOT et MADELAINE (1976)  
"Granulométrie d'aérosols atmosphériques par microscopie électro-  
nique"  
(Communication personnelle).
- 8) H. BRENER and L.J. GAYDOS (1977)  
"The constrained brownian movement of spherical particles in cy-  
lindrical pores of comparables radius. Models of diffusive and  
convective transport of solute molecules in membranes and po-  
rous media"  
J. Coll. Interface Sci. , 58, 2, 312-356.
- 9) J. BRICARD (1977)  
"Physique des Aérosols"  
Rapport C E A - R - 4831.
- 10) J. BRICARD, D. BOULAUD, D. VIGLA, G. MADELAINE (1975)  
"SO<sub>2</sub> transformation in controled atmosphere leading to the  
production of Aerosol particles"  
Water, Air and Soil Pollution, 4, 435-445.



- 11) J. BRICARD, F. BILLARD et G. MADELAINE (1969)  
"Etude des noyaux de condensation qui se forment dans l'air exempt d'aérosols"  
Ann. Inst. Hydr. Chim. 40, 107, 86-92.
- 12) J. BRICARD (1965)  
"Action of radioactivity and of pollution upon parameters of atmospheric electricity"  
Problems of atmospheric and space electricity  
(SIC - CORONITI, Ed. ), Elsevier publishing company, Amsterdam.
- 13) R. BROCK (1962)  
"On the theory of thermal forces acting on Aerosol particles"  
J. Coll. Sci. , 17, 768-780.
- 14) P.A. BUSINGER and G.H. GOLUB (1969)  
"Singular value decomposition of a complex matrix"  
Comm. Assoc. Comput. Mach., 12, 564-565.
- 15) a) J.F. BUTOR (1975)  
"Application des techniques de la microscopie électronique à l'étude de l'aérosol atmosphérique fin".  
Thèse de 3ème cycle, Université de Bretagne Occidentale, n° 51.
- b) F. CAILLIEZ et J.P. PAGES (1976)  
"Régression linéaire", In:  
Introduction à l'Analyse des Données. SMASH, Paris , 303-350.

- 16) T.N. CARLSON and J.M. PROSPERO (1972)  
"The large scale movement of Saharan Air outbreaks over the Northern equatorial Atlantic"  
J. Applied Met., 11, 2, 283-297.
- 17) P. CAZES (1975)  
"Protection de la régression par utilisation des contraintes linéaires et non linéaires"  
Rev. Stat. Appl., 23, n° 3, 37-57.
- 18) S. CHANDRASEKAR (1943)  
"Stochastic problems in physics and astronomy"  
Rev. mod. Phys. 1943, 5, 293-300.
- 19) R.T.H. COLLIS (1969)  
"Lidar"  
Advances in Geophysics (Landsberg and Van Mieghen, Eds.)  
Academic Press, London, 113-139.
- 20) R. COMOLET (1963)  
"Mécanique expérimentale des fluides"  
Masson et Cie., II, 30-40.
- 21) P. CHAUVIN (1974)  
"Physicochimie et physiopathologie des polluants atmosphériques"  
Masson et Cie., Paris.

- 22) D.W. COOPER and L.A. SPIELMAN (1976)  
"data inversion using non linear programming with physical constraints : Aerosol size distribution measurement by impactor"  
Atmospheric environment, 10, 9, 723-729.
- 23) E. CUNNINGHAM (1910)  
"On the velocity of steady fall of spherical particles through fluid medium"  
Proc. Roy. Soc., 83, 1, 357-365.
- 24) C.N. DAVIES (1974)  
"Size distribution of atmospherique particles"  
J. Aerosol Sci. , 5, 293-300.
- 25) C.N. DAVIES (1973)  
"Air filtration"  
Academic Press, New York.
- 26) B.V. DERJAGUIN, S.P. BAKANOV and Ja. I. RABINOVICH (1965)  
"Theory of thermophoresis of Aerosol particles and its verifications"  
Proceedings of the first national conference on Aerosols, Czechoslovak Academy of Sciences, Prague, 197-205.
- 27) V.V. DERJAGUIN and Yu. I. YALAMOV (1972)  
"Theory of thermophoresis of aerosol particles"  
Topics in current aerosol research, 3, 137-200.

28) B.V. DERJAGUIN, Ya. I. RABINOVICH, A.I. STOROZHILOVA, and  
G.I. SHCHERBINA (1976)

"Measurement of the coefficient of thermal slip of gases  
and the thermophoresis velocity of large-size aerosol parti-  
cles"

J. Coll. Interface Sci. 57, 3, 451-461.

29) P.S. EPSTEIN (1924)

"On the resistance experienced by spheres in their motion through  
gases"

Phys. Rev., 23, 710.

30) E. ERIKSON (1960)

"The yearly circulation of chloride and sulfur in nature ;  
meteorological, geochemical and pedological impaction"

Tellus, 12, 1, 63-109.

31) N.H. FLETCHER (1958)

"Size effect in heterogeneous nucleation"

J. Chem. Phys. , 29, 3, 572-576.

32) N.H. FLETCHER (1966)

"The condensation of water-vapour"

The microphysics of rain clouds. Cambridge University Press,  
37-65.

- 33) W.W. FOSTER (1960)  
"The size of wood smoke particles". In : Aerodynamic Capture of Particles (E.G. RICHARDSON, Ed.). Pergamon Press, Oxford.
- 34) S.K. FRIEDLANDER (1960)  
"Similarity considerations for the particles size spectrum of a coagulating, sedimenting aerosol"  
J. Meteorol, 17, 5, 479-483.
- 35) N.A. FUCHS (1964)  
"The mechanics of aerosol"  
Pergamon Press, 290-300.
- 36) N.A. FUCHS, I.B. STECHINA and V.I. STAROSSELSKII (1962)  
"On the determination of particle size distribution in polydisperse aerosols by the diffusion method"  
Brit. J. Appl. Phys., 13, 280-281.
- 37) K. FURTH (1955)  
"Of the theory of diffusion and sedimentation of condensation nuclei in cylindrical containers"  
Geofis. pura Appl. , 31, 80-89.
- 38) T. GILLESPIE (1955)  
"The role of electric forces in the filtration of aerosols by fiber filters"  
J. Colloid Sci., 10, 299-314.

39) L. GODARD (1959)

"Procédé pour déterminer les dimensions des gouttelettes de brouillard ou de nuage"

Bulletin de l'Observatoire du Puy de Dôme, 1, 11-13.

40) G. GOLUB and W. KAHAN (1965)

"Calculating the singular values and pseudo-inverse of a matrix"

J. Siam Numer. Anal., B2, 205-224.

41) P.G. GORMLEY (1938)

"Diffusion and fall of atmospheric condensation nuclei"

Proc. Roy. Irish Acad., 45A, 47-63.

42) P.G. GORMLEY and M. KENNEDY (1949)

"Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube"

Proc. Roy. Irish Acad., 52 A, 163-169.

43) F.T. GUCKER and C.I. O'KONSKI (1949)

"Electronic methods of counting aerosol particles"

Chem. Rev., 44, 373-389.

44) A.B. HARKER, L.W. RICHARDS and W.E. CLARK (1977)

"The effect of atmospheric SO<sub>2</sub> photochemistry upon observed nitrate concentrations in aerosols"

Atm. Env., 11, 1, 87-91.

- 45) B.M. HERMAN, S.R. BROWING and J.A. REAGAN (1971)  
"Determination of aerosol size distribution from Lidar measurements"  
J. Atm. Sci., 28, 7, 763-771.
- 46) J. HEYDER (1975)  
"Gravitational deposition of aerosol particles within a system of randomly oriented tubes"  
J. Aerosol Sci., 6, 133-137.
- 47) W.A. HOPPEL, H.E. GERBER and T.A. WOJCIENCHOWSKI (1977)  
"Measurement of the relationship between size and critical superpuration for natural aerosol and salt nuclei"  
9th International Conference on atmospheric aerosol, condensation and ice nuclei, Galway, Ireland.
- 48) Y. IKEBE (1972)  
"Determination of the size distribution of polydisperse sub-micron aerosols by a response matrix method"  
Pure Appl. Geophys., 98, 197-212.
- 49) D.B. INGHAM (1975)  
"Diffusion of aerosol from a stream flowing through a cylindrical tube"  
J. Aerosol Sc., 6, 125.

- 50) D.B. INGHAM (1976)  
"Simultaneous diffusion and sedimentation of aerosol particles in rectangular tubes"  
J. Aerosol Sci., 7, 5, 373-380.
- 51) T. ITO (1977)  
"On the size distribution of aerosols in north pacific air mass"  
9th International Conference on Atmospheric Aerosol, Condensation and Ice Nuclei, Galway, Ireland.
- 52) R. JAENICKE (1977)  
"The size distribution of Aitken nuclei in background aerosols"  
9th Intern. Conf. on Atmos. Aerosol, Condens. and Ice Nuclei, Galway, Ireland.
- 53) D.W. JORDAN (1954)  
"The adhesion of dust particules"  
Brit. J. Appl. Phys. , suppl. n° 3, S194-S198.
- 54) C.E. JUNGE (1963)  
"Large scale distribution of condensation nuclei in the troposphere"  
J. Rech. Atmosph., 1 , 133-137.
- 55) C.E. JUNGE (1968)  
"Comments on concentration and size distribution measurements of atmospheric aerosols and a test of the theory of self-pre-



- serving size distributions"  
J. Atm. Sci., 26, 603-608.
- 56) F. KASTEN (1968)  
"Falling speed of aerosol particles"  
J. Appl. Met., 7, 944-947.
- 57) M. KNUDSEN and S. WEBER (1911)  
"Lufwiderstand gegen die langsame Bewegung kleiner Kugeln"  
Ann. Phys., 36, 981-994.
- 58) P.J. LOOY, D. RIMBERG and F.J. HAUGHEY (1975)  
"A laser light scattering particle size spectrometer sensitive in the submicron diameter range"  
J. Aerosol Sci., 6, 3, 183-189.
- 59) B.Y.H. LIU and D.Y.H. PUI (1974)  
"A submicron aerosol standard and primary, absolute calibration of the condensation Nuclei Counter"  
J. Coll. Interface Sci., 47, 155-171.
- 60) B.Y.H. LIU and D.Y.H. PUI (1974)  
"Equilibrium bipolar charge distribution of aerosols"  
J. Coll. Interface Sci., 49, 305-312.
- 61) B.Y.H. LIU and D.Y.H. PUI (1974)  
"Electrical neutralisation of aerosols"  
J. Aerosol Sci., 5, 465-472.

- 62) B.Y.H. LIU and C.S. KIM (1977)  
"On the counting efficiency of condensation nuclei counters"  
Atmos. Envir., 11, 1097-1100.
- 63) G. MADELAINE, A. RENOUX (1974)  
"L'aérosol atmosphérique. Sa nature et sa mesure"  
Pollution Atmosphérique, 64, 389-397
- 64) J.P. MAIGNE (1977)  
"Détermination de la granulométrie d'un aérosol au moyen d'une  
batterie de diffusion"  
Thèse d'Etat, Paris.
- 65) J.P. MAIGNE (1977)  
"Nouvelle méthode de détermination de la granulométrie d'un  
aérosol au moyen d'une batterie de diffusion"  
J. Aerosol Sci., 5, 339-355.
- 66) E.F. MALOVE and W.C. HINDS (1976)  
"Aerosol measurements by combined light scattering and centri-  
fugation"  
J. Aerosol Sci., 7, 409-423.
- 67) A.H. MARTY, H. BARDEAU et LOPEZ (1972)  
"Mesure des aérosols atmosphériques à l'aide d'un lidar"  
C.P.A.T., Université de Toulouse.

68) G. MIE (1908)

"Beiträge zur optik trüber Medien, speziall kolloïdaler Metallösungen"

Ann. Phys. , 3, 25, 377-445.

69) a) R.A. MILLIKAN (1923)

"Coefficients of slip in gases and law of reflection of molecules from the surface of solids and liquids"

Phys. Rev. , series II, 21, 3, 217-238.

b) P. MULCEY (1976)

"Contribution à l'étude de l'aérosol stratosphérique"

Thèse de 3ème cycle, Paris VI.

70) G. NATANSON (1957)

"Deposition of aerosol particles by electric attraction upon a cylinder around which they are flowing"

Dokl. Akad. Nauk USSR, 112, 4, 696-699.

71) M. NICOLET (1963)

"La contribution et la composition de l'atmosphère supérieure"

Geophysics, les Houches. (DEWITT et HIEBLOT, ~~E~~) Gordon and

Breach, 200-277.

72) P.J. NOLAN and E.L. KENNAN (1949)

"Condensation nuclei from hot platinum : size, coagulation, coefficient and charge distribution"

Proc. Roy. Irish Acad., 52 A, 171-190.

73) J.Y. PAUGAM (1975)

"Formation de noyaux aitken dans l'air au-dessus de la zone littorale"

J. Rech. Atmos., 9, 2, 67-75.

74) J.Y. PAUGAM, B. NGUYEN, B. BONSANG, S. FONGANG (1977)

"Production de noyaux Aitken et de composés soufrés dans l'air au-dessus d'une zone littorale".

Chemosphere, 6, 333-339.

75) J.Y. PAUGAM (1978)

Thèse d'Etat, Université de Brest.

76) M.L. PERRIN, J.P. MAIGNE et G.J. MADELAINE (1977)

"Rayon critique des particules d'aérosols produits par radiolyse"

J. Aerosol Sci., 5, 349-353.

77) B.L. PHILLIPS (1962)

"A technic for the numerical solution of certain integral equations of the first kind"

J. Assoc. Comput. Mach., 9, 84-97.

78) J. PICH, B. BILEK (1965)

"Temperature characteristics of fiber filters"

Proc. First Nat. Conf. Aerosols, Prague, Czech. Acad. Sci., 257-264.

79) J. PICH (1964)

"Impaction of aerosol particles in the neighbourhood of a circular hole"

Coll. Czech. Chem. Commun., 29, 2223-2227.

80) L.W. POLLAK and A.L. METNIEKS (1957)

"On the determination of the diffusion coefficient of heterogeneous aerosols by the dynamic method"

Geofis. pura Appl. , 37, 183-190.

81) D.Y.H. PUI (1976)

"Experimental study of diffusion charging of aerosols"

Particle technology Laboratory Publication, Univ. of Minnesota n° 289.

82) H. QUINZEL (1970)

"Determination of size distribution of atmospheric aerosol particles from spectral solar radiation measurements"

J.Geophys. Res., 75, 15, 2915-2931.

83) E.A. RAMSKILL and W.L. ANDERSON (1951)

"The inertial mechanism in the mechanical filtration of aerosols"

J. Colloid Sci., 6, 416-428.

84) K.H. RASMUSSEN, M. TAHERI and R.L. KABEL (1975)

"Global emission and natural processes for removal of gaseous pollutants"

Water, Air and Soil Pollution, 4, 33-64.

- 85) A. RENOUX, J.Y. PAUGAM, G. MADELAINE et S. FONGANG (1977)  
"On the production of very high condensation nuclei concentration at a tidal seashore"  
9th Intern.Conf. on Atmos. Aerosol, Condensation and Ice Nuclei  
Galway, Ireland.
- 86) J.R. RICHARDS, D.L. FOX and F.C. REIST (1976)  
"The influence of molecular complexes on the photo-oxidation of sulfur dioxide"  
Atm. Env., 10, 3, 211-217.
- 87) S.A. ROACH (1958)  
"Counting errors in thermal precipitators samples"  
Brit. J. Ind. Med 15, 250-256.
- 88) J. ROSEN (1969)  
"Possible identification of volcanic dust in the stratosphere"  
Atm. Phys., Univ. of Minnesota, Apr 28.
- 89) D. SINCLAIR, R.J. COUNTIES and G.S. HOOPES (1974)  
"Effet of relative humidity on the size of atmospheric aerosol particles"  
Atm. Env., 8, 111-117.
- 90) J. SMAGORINSKI (1969)  
"Problems and promises of deterministic extended range forecasting"  
Bull. Am. Met. Soc., 40, 886-911.
- 91) K. SPURNY, G. MADELAINE (1971)  
"Analytical methods for determination of aerosols by means of membrane ultra-filters. Efficiency measurement of nuclear pore

filters by means of latex aerosols"

Coll. Czechoslov. Chem. Comm., 36, 2857-2860.

- 92) K. SPURNY, J. HERBEK and J.P. LODGE Jr. (1971)

"Analytical methods for determination of aerosols by means of membrane ultra-filters. Aerosol sampling under extreme gas conditions"

Coll. Czech. Chem. Comm., 36, 2749-2756.

- 93) K. SPURNY and J. PICH (1965)

"Analytical methods for determination of aerosols by means of membrane ultra-filters. Diffusion and impaction precipitation of aerosol particles by membrane ultrafilter.

Coll. Czech. Chem. Comm., 30, 2276-2287.

- 94) K. SPURNY and J.P. LODGE Jr. (1968)

"Aerosol filtration using nucleopore filters"

Staub-Reinhalt Luft ( in English) 28, 5, 1-10.

- 95) K. SPURNY and J.P. LODGE Jr. (1968)

"Analytical methods for determination of aerosols by means of membrane ultra-filters. Structural and filtration properties of nuclear pore filters"

Coll. Czech. Chem. Commun., 33, 3679-3693.

- 96) K. SPURNY, and J. PICH (1963)

"Analytical methods for determination of aerosols with help of membrane ultra-filters. On the mechanism of membrane ultra-fil-

ter action"

Coll. Czech. Chem. Commun., 28, 2886-2894.

97) STOREBØ (1970)

"Formation of dense heterogeneous aerosol by the dynamic method"

J. Geophys. Res., 75, 15, 2931-2938.

98) D. TABOR and R. WINTERTON (1969)

"The direct measurement of normal and retarded Van der Waals forces"

Proc. Roy. Soc., 312, A, 335-350.

99) J.W. THOMAS, D. RIMBERG and T.J. MILLER (1971)

"Gravity effect in air filtration"

J. aerosol Sci., 2, 31-38.

100) J. TOWNSEND (1900)

"The diffusion of ions into gases"

Philosophical Transactions of the Royal Society, London, 193, A, 129-158.

101) P.Y. TURPIN (1972)

"Granulométrie des aérosols ultra-fins par détection photonique"

Thèse d'Etat, Paris.

102) S. TWOMEY and G.T. SEVERYNSE (1964)

"On the relation between size of particles and their ability to nucleate condensation of natural clouds"

J. Rech. Atm., 1, 2, 81-85.



- 103) S. TWOMEY (1962)  
"Equation for the decay by diffusion of particles in an aerosol flowing through circular and rectangular channels"  
Bull. Obs. du Puy-de-Dôme, 4, 173-180.
- 104) S. TWOMEY and G.T. SEVERYNSE (1963)  
"Measurements of size distributions of natural aerosols"  
J. Atm. Sci., 20, 5, 392-396.
- 105) S. TWOMEY (1963)  
"The determination of aerosol size distributions from diffusional decay measurements"  
J. Franklin Inst. , 275, 2, 121-138.
- 106) S. TWOMEY (1963)  
"On the numerical solution of Fredholm integral equation of the first kind by the inversion of the linear system produced by quadrature"  
J. Assoc. Comp. Mach., 10, 97-101.
- 107) L. WALDMAN and K.H. SCHMITT (1966)  
"Thermophoresis and diffusiophoresis of aerosols". In : Aerosol Sciences (C.N. DAVIES, Ed.) Academic Press, London, 137-162.
- 108) W. WALKENHORST (1970)  
"Reflections and research on the filtration of dust from gases with special consideration of electrical forces"  
J. Aerosol Sci., 1, 3, 225-242.
- 109) H. WALTER (1972)  
"Etudes théoriques sur la coagulation et la distribution dimensionnelle des aérosols de condensation"  
Thèse, Université d'Erlangen-Nuremberg.

110) J.H.L. WATSON (1946)

"Filmless sample mounting for electron microscope"

J. Appl. Phys., 17, 121-131.

111) K.T. WHITBY and W.E. CLARK (1966)

"Electric aerosol particle counting and size distribution  
measuring system for the 0.015 to 1  $\mu$  range"

Tellus, 18, 2, 573-586.