



**HAL**  
open science

# La formation des poussières de four électrique d'acierie : de la genèse des particules à leur évolution morphologique

A.G. Guézennec

## ► To cite this version:

A.G. Guézennec. La formation des poussières de four électrique d'acierie : de la genèse des particules à leur évolution morphologique. Génie des procédés. Institut National Polytechnique de Lorraine - INPL, 2004. Français. NNT : . tel-00370527

**HAL Id: tel-00370527**

**<https://theses.hal.science/tel-00370527>**

Submitted on 24 Mar 2009

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# LA FORMATION DES POUSSIÈRES DE FOUR ELECTRIQUE D'ACIERIE : DE LA GENESE DES PARTICULES A LEUR EVOLUTION MORPHOLOGIQUE

THESE

Présentée par  
Anne-Gwénaëlle GUEZENNEC

Pour obtenir le grade de  
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : Science et Ingénierie des Matériaux

Thèse soutenue publiquement le 17 décembre 2004  
devant le Jury composé de :

*Rapporteurs :* F. GRUY  
F. RESCH

*Examineurs :* D. ABLITZER  
J. BERTRAND  
F. PATISSON  
P. SESSIECQ

*Invités :* J.P. BIRAT  
J.C. HUBER



# Table des matières

<b>Introduction.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre I : Contexte de l'étude .....</b>	<b>3</b>
<b>I.1. Présentation du four électrique à arc .....</b>	<b>3</b>
I.1.1. La place du four électrique dans les filières de production de l'acier.....	3
I.1.2. Description du four électrique à arc .....	5
<i>Description générale .....</i>	<i>5</i>
<i>Equipements auxiliaires.....</i>	<i>6</i>
I.1.3. Fonctionnement du four électrique à arc .....	7
<i>Fusion (14 min) .....</i>	<i>8</i>
I.1.4. Production d'acier et émission de poussières.....	8
<b>I.2. Le devenir des poussières de four électrique .....</b>	<b>9</b>
I.2.1. Le stockage en CSDU de classe I.....	9
I.2.2. La réinjection au four électrique.....	9
I.2.3. La valorisation des poussières par la filière pyrométallurgique .....	10
I.2.4. La valorisation des poussières par la filière hydrométallurgique .....	10
<b>I.3. Démarche adoptée .....</b>	<b>11</b>
<b>Chapitre II : Les mécanismes de formation des poussières .....</b>	<b>13</b>
<b>II.1. Caractérisation des poussières.....</b>	<b>13</b>
II.1.1. Caractérisation physico-chimique des poussières.....	13
<i>Composition chimique.....</i>	<i>13</i>
<i>Minéralogie des poussières.....</i>	<i>15</i>
II.1.2. Caractéristiques morphologiques .....	17
<i>Granulométrie.....</i>	<i>17</i>
<i>Morphologie des particules primaires .....</i>	<i>19</i>
<i>Structure des agglomérats de particules primaires .....</i>	<i>23</i>
II.1.3. Conclusion .....	26
<b>II. 2. Etude bibliographique des mécanismes de formation .....</b>	<b>26</b>
II.2.1. Identification des mécanismes de formation.....	26
<i>Evolution des théories .....</i>	<i>26</i>
<i>Les mécanismes d'émission de précurseurs de poussières .....</i>	<i>28</i>
<i>La transformation des précurseurs en poussières .....</i>	<i>29</i>
II.2.2. L'émission de précurseurs de poussières .....	30
<i>Les projections à l'impact du jet d'oxygène.....</i>	<i>30</i>
<i>La volatilisation .....</i>	<i>34</i>
<i>Les projections par éclatement de bulles de gaz .....</i>	<i>37</i>
II.2.3. La transformation des précurseurs en poussières .....	38

<i>Evolution chimique dans les fumées</i> .....	38
<i>Agglomération des particules dans les fumées</i> .....	41
II.2.4. Conclusion .....	44

## **Chapitre III :Etude expérimentale de la formation des poussières par éclatement de bulles de gaz** .....

### **III.1. Introduction**.....

### **III.2. Eléments bibliographiques**.....

III.2.1. Description du phénomène .....	48
<i>Equilibre métastable de la bulle à la surface du bain</i> .....	48
<i>Rupture du film recouvrant la bulle</i> .....	57
<i>Formation d'un jet liquide</i> .....	65
III.2.2. Caractéristiques des émissions .....	68
<i>Caractéristiques des gouttes de jet</i> .....	68
<i>Caractéristiques des gouttes de film</i> .....	71
III.2.3. Le rôle du laitier dans le cas du four électrique.....	78

### **III.3. Techniques expérimentales** .....

III.3.1. Description du dispositif de fusion .....	81
<i>Le réacteur de fusion</i> .....	81
<i>Composition de la charge</i> .....	83
<i>Géométrie de la charge</i> .....	84
III.3.2. Le dispositif de bullage.....	85
<i>Spécifications du montage</i> .....	85
<i>Système de bullage au VIM</i> .....	85
III.3.3. Le dispositif de mesure.....	88
<i>Les techniques de visualisation</i> .....	88
<i>Le dispositif de captage des particules fines</i> .....	90
III.3.4. Mode opératoire.....	94
<i>Synthèse du dispositif expérimental</i> .....	94
<i>L'étape de fusion</i> .....	95
<i>L'étape de prélèvement</i> .....	96
III.3.5. Méthodes de caractérisation des particules fines.....	97
<i>Quantification des particules fines par analyse gravimétrique</i> .....	97
<i>Caractérisation de la morphologie des particules par microscopie</i> .....	97
<i>Caractérisation de la granulométrie par diffraction laser</i> .....	98
<i>Autres méthodes de caractérisation</i> .....	100

### **III.4. Résultats expérimentaux** .....

III.4.1. Visualisation du phénomène .....	100
III.4.2. Caractérisation des gouttes de jet.....	110
<i>Nombre de gouttes de jet</i> .....	110
<i>Taille des gouttes de jet</i> .....	111
III.4.3. Caractérisation des gouttes de film .....	113
<i>Caractérisation in-situ</i> .....	113
<i>Caractérisation des particules fines par microscopie</i> .....	116
<i>Granulométrie des gouttes de film</i> .....	118
<i>Quantification des émissions de gouttes de film par analyse gravimétrique</i> .....	121

### **III.5. Interprétation des résultats expérimentaux et extrapolation au cas du four électrique** .....

III.5.1. Formation des gouttes de jet .....	126
III.5.2. Rupture du film et formation des gouttes de film .....	127

<b>III.6. Conclusions .....</b>	<b>130</b>
<b>Chapitre IV : Etude de l'évolution morphologique.....</b>	<b>133</b>
<b>IV.1. Introduction.....</b>	<b>133</b>
IV.1.1. Terminologie employée .....	133
IV.1.2. Description générale d'un agglomérat .....	135
<i>Cohésion d'un agglomérat .....</i>	<i>135</i>
<i>Morphologie .....</i>	<i>135</i>
<b>IV.2. Description et mise en équation des mécanismes d'évolution morphologique.....</b>	<b>137</b>
IV.2.1. Transport des particules – Etablissement du bilan de population .....	137
IV.2.2. Description de l'agglomération .....	139
<i>Définition.....</i>	<i>139</i>
<i>Formulation mathématique.....</i>	<i>140</i>
IV.2.3. Description du frittage et de la coalescence .....	141
<i>Définitions .....</i>	<i>141</i>
<i>Formulation mathématique.....</i>	<i>143</i>
IV.2.4. Description du dépôt par thermophorèse.....	145
<i>Définition.....</i>	<i>145</i>
<i>Formulation mathématique.....</i>	<i>145</i>
IV.2.5. Conclusions .....	147
<b>IV.3. Modélisation de l'évolution morphologique .....</b>	<b>147</b>
IV.3.1. Présentation de la méthode de discrétisation .....	147
<i>Modèle à sections .....</i>	<i>147</i>
<i>Représentation de l'agglomération.....</i>	<i>148</i>
<i>Représentation du frittage et de la coalescence .....</i>	<i>151</i>
<i>Récapitulation des équations du modèle .....</i>	<i>152</i>
IV.3.3. Résolution et validation numérique du modèle.....	152
<b>IV.4. Détermination des paramètres du modèle.....</b>	<b>153</b>
IV.4.1. Détermination des paramètres de l'agglomération .....	153
<i>Agglomération brownienne.....</i>	<i>153</i>
<i>Agglomération turbulente .....</i>	<i>156</i>
<i>Agglomération par sédimentation différentielle.....</i>	<i>157</i>
<i>Noyau d'agglomération résultant .....</i>	<i>159</i>
IV.4.2. Détermination des paramètres du frittage.....	159
<i>Temps caractéristique de coalescence .....</i>	<i>159</i>
<i>Temps caractéristique de frittage .....</i>	<i>160</i>
<i>Temps caractéristique résultant .....</i>	<i>160</i>
IV.4.3. Détermination des paramètres de la thermophorèse .....	160
IV.4.4. Détermination des données physiques.....	161
<b>IV.5. Exploitation du modèle – Influence des différents paramètres.....</b>	<b>162</b>
IV.5.1. Introduction.....	162
IV.5.2. Etude de cas académiques.....	162
<i>Etude de l'agglomération brownienne .....</i>	<i>164</i>
<i>Frittage et coalescence.....</i>	<i>168</i>
<i>Agglomération par sédimentation différentielle.....</i>	<i>170</i>
<i>Agglomération turbulente .....</i>	<i>173</i>
IV.5.2. Application au cas du four électrique à arc .....	179
<i>Description des paramètres de calcul.....</i>	<i>179</i>

<i>Evolution morphologique d'une population de particules issues de la vaporisation et de l'éclatement des bulles</i> .....	182
<i>Evolution morphologique d'une population de particules issues uniquement de la vaporisation</i> .....	190
<i>Comparaison avec les résultats d'Huber (2000)</i> .....	192
IV.5.3. Application au cas du convertisseur .....	193
<b>IV.6. Conclusions</b> .....	<b>198</b>
<b>Conclusion générale</b> .....	<b>201</b>
<b>Bibliographie</b> .....	<b>207</b>
<b>Annexe A : Formation de bulles à partir d'un capillaire plongé dans un liquide</b> .....	<b>219</b>
<b>Annexe B : Séquences d'éclatement de bulles à la surface de l'acier liquide</b> .....	<b>225</b>
<b>Annexe C : Modélisation de l'évolution morphologique des poussières</b> .....	<b>229</b>
<b>Annexe D : Quelques données thermo-physiques du modèle</b> .....	<b>241</b>

# Nomenclature

$A$	nombre d'Avogadro
$a$	surface d'une particule ( $\text{m}^2$ )
$a_c$	constante de capillarité du liquide (m)
$A_i(z)$	concentration surfacique de la classe $i$ ( $\text{m}^{-1}$ )
$a_i$	surface d'une particule de volume $x_i$ ( $\text{m}^2$ )
$a_{s,i}$	surface d'une sphère de volume $x_i$ ( $\text{m}^2$ )
$Bo$	nombre de Bond
$c_i$	vitesse de l'agglomérat de volume $x_i$ ( $\text{m s}^{-1}$ )
$c_{i,j}$	« vitesse équivalente » relative aux agglomérats de volume $x_i$ et $x_j$ ( $\text{m s}^{-1}$ )
$Cu$	coefficient de Cunningham
$d$	diamètre de l'orifice (m)
$d$	diamètre équivalent en volume d'une particule (m)
$d_{app}$	diamètre apparent de la bulle à la surface du bain (m)
$d_B$	diamètre équivalent en volume de la bulle (m)
$d_c$	diamètre de collision (m)
$D_c$	diamètre de conduite (m)
$d_{c,i}$	diamètre de collision d'une particule de volume $x_i$ (m)
$d_e$	diamètre extérieur du capillaire (m)
$d_{ext}$	diamètre extérieur du creuset (m)
$D_f$	dimension fractale
$D_{f,i}$	coefficient de diffusion d'une particule de volume $x_i$ ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )
$d_i$	diamètre intérieur du capillaire (m)
$d_{int}$	diamètre intérieur du creuset (m)
$d_j$	diamètre du jet (m)
$d_{jet}$	diamètre des gouttes de jet (m)
$d_{pd}$	diamètre moyen des particules discrètes constituant un agglomérat (m)
$d_{pd,i}$	diamètre moyen des particules discrètes constituant un agglomérat de volume $x_i$ (m)
$D_v$	coefficient de diffusion en volume ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )
$Eö$	nombre de Eötvös
$f$	coefficient de friction aux parois
$Fr$	nombre de Froude
$g_i$	paramètre de correction de taille de l'agglomérat de volume $x_i$
$g_{i,j}$	paramètre de « correction de taille équivalente » relative aux agglomérats de volume $x_i$ et $x_j$
$h$	épaisseur du film (m)
$k_B$	constante de Boltzmann ( $k_B = 1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ )
$k_{gaz}$	conductivité thermique du gaz ( $\text{W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ )

$Kn_i$	nombre de Knudsen d'une particule de diamètre de collision $d_{c,i}$
$k_p$	conductivité thermique de la particule ( $W\ m^{-1}\ K^{-1}$ )
$K_{th}$	coefficient de thermophorèse
$l_i$	libre parcours moyen d'une particule de volume $x_i$ (m)
$M$	nombre de sections
$M_B$	masse de gouttes de film correspondant à l'éclatement d'une bulle ( $\mu g/bulle$ )
$M_b^1$	masse du bourrelet par unité de longueur ( $kg\ m^{-1}$ )
$M_g$	masse de gouttes de film pour $1\ m^3$ de gaz injecté ( $g\ m^{-3}$ )
$M_{gaz}$	masse molaire du gaz ( $kg\ mol^{-1}$ )
$m_i$	masse de l'agglomérat de volume $x_i$ (kg)
$M_{mol,p}$	masse molaire de la particule ( $kg\ mol^{-1}$ )
$M_p$	masse de gouttes de film pour 1 min. de prélèvement ( $\mu g\ min^{-1}$ )
$n(v)$	nombre de particules de volume $v$ par $m^3$ de l'espace physique et par $m^3$ de l'espace des propriétés (part. $m^{-6}$ )
$N_0$	nombre initial total de particules
$N_C$	capacitance
$N_{film}$	nombre moyen de gouttes de film
$N_i(z)$	densité moyenne de particules dans la classe $i$ (part. $m^{-3}$ )
$N_{jet}$	nombre moyen de gouttes de jet par bulle
$n_{pd}$	nombre moyen de particules discrètes constituant un agglomérat
$n_{pd,i}$	nombre moyen de particules discrètes constituant un agglomérat de volume $x_i$
$N_W$	nombre de débit
$Q_B$	débit de bullage (bulles $min^{-1}$ )
$R_0$	rayon de courbure du film (m)
$Re$	nombre de Reynolds du gaz
$Re_p$	nombre de Reynolds de la particule
$S_{film}$	surface du film ( $m^2$ )
$T$	température (K)
$T_{gaz}$	température moyenne du gaz (K)
$U_{film}$	vitesse d'ouverture du film ( $m\ s^{-1}$ )
$U_{gaz}$	vitesse du gaz ( $m\ s^{-1}$ )
$U_{th}$	vitesse de thermophorèse ( $m\ s^{-1}$ )
$U_{th,paroi}$	vitesse de thermophorèse à la paroi de la conduite ( $m\ s^{-1}$ )
$v$	volume d'une particule ( $m^3$ )
$V_c$	volume de chambre ( $m^3$ )
$V_i(z)$	concentration volumique de la classe $i$
$v_{pd}$	volume moyen des particules discrètes constituant un agglomérat ( $m^3$ )
$x_i$	volume représentatif de la classe $i$ ( $m^3$ )

### **Lettres grecques**

$\alpha_s$	efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle
$\beta(v, v')$	noyau d'agglomération de deux particules de volume $v$ et $v'$ ( $m^3\ s^{-1}$ )
$\delta_{i,j}$	symbole de Kronecker
$\varepsilon$	vitesse de dissipation de l'énergie turbulente par unité de masse ( $m^2\ s^{-3}$ )
$\eta_r$	échelle de Kolmogorov moyenne (m)

$\lambda_{gaz}$	libre parcours moyen du gaz (m)
$\mu_{gaz}$	viscosité dynamique du gaz ( $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ )
$\mu_p$	viscosité de la particule ( $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ )
$\nu_{gaz}$	viscosité cinématique du gaz ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )
$\rho_{gaz}$	masse volumique du gaz ( $\text{kg m}^{-3}$ )
$\rho_l$	masse volumique du liquide ( $\text{kg m}^{-3}$ )
$\rho_p$	masse volumique de la particule ( $\text{kg m}^{-3}$ )
$\sigma_{l/g}$	tension interfaciale ( $\text{N m}^{-1}$ )
$\sigma_p$	tension de surface de la particule ( $\text{N m}^{-1}$ )
$\tau_c$	temps caractéristique de coalescence (s)
$\tau_{coal.,i}$	temps caractéristique de coalescence par déformation visqueuse d'un agglomérat de volume $x_i$ (s)
$\tau_{frit.,i}$	temps caractéristique de frittage d'un agglomérat de volume $x_i$ (s)
$\Phi_b$	angle parcouru par le bourrelet depuis l'éclatement



# Introduction

Au cours des dernières décennies, la généralisation du recyclage des ferrailles est allée de pair avec la multiplication des fours électriques à arc. Ce réacteur sidérurgique est en effet considéré comme l'outil idéal pour produire de l'acier à partir de ferrailles recyclées. Son principal inconvénient est qu'il génère, comme la plupart de procédés industriels de transformation de la matière, des émissions polluantes parmi lesquelles des poussières, constituées majoritairement d'oxydes métalliques et réfractaires. Récupérées par un système de captage et d'épuration des fumées, elles représentent entre 15 et 25 kg de déchets par tonne d'acier produit. En raison de leur teneur en éléments lixiviables - zinc, plomb, cadmium pour citer les plus critiques - ces poussières sont considérées comme toxiques par la législation française qui impose leur stockage dans des sites habilités, appelés Centres de Stockage des Déchets Ultimes (CSDU) de classe 1.

Avec l'augmentation de la production d'acier par la filière électrique, les poussières représentent aujourd'hui un coût économique sans cesse croissant auquel s'ajoutent des contraintes réglementaires de plus en plus fortes en matière de gestion des déchets. Cette situation a conduit les sidérurgistes à envisager de nouvelles stratégies de gestion des poussières, orientées vers la réduction des émissions de poussières et le développement de la valorisation par le recyclage.

Jusqu'à la fin des années 90, la piste la plus souvent envisagée pour contrôler la production de poussières consiste à les recycler partiellement au four électrique lui-même. Parallèlement, les poussières passent du rang de déchets à celui de « co-produits » que l'on cherche à valoriser en recyclant le zinc qu'elles contiennent. En effet, la teneur en zinc des poussières tend à croître régulièrement en raison de la généralisation, dans la construction automobile autant que dans le BTP, de l'emploi de produits zingués qui se retrouvent in fine dans les ferrailles. Ainsi plusieurs procédés, de types pyrométallurgique et hydrométallurgique, ont vu le jour pour extraire le zinc contenu dans les poussières. Ces méthodes de valorisation sont cependant encore peu répandues car elles restent économiquement et techniquement difficiles à mettre en œuvre, les produits n'atteignant pas toujours les critères de qualité requis par les producteurs de zinc. Les études les plus récentes ont fait apparaître la nécessité de recherches plus fondamentales afin de mieux connaître les phénomènes qui concourent à la formation des poussières. A terme, ces recherches permettront d'identifier des moyens d'action pour réduire les émissions de poussières à la source et pour modifier les caractéristiques des poussières afin de répondre aux exigences des procédés de valorisation.

L'étude que nous avons menée au LSG2M (Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie) en collaboration avec l'IRSID (maintenant ARCELOR Research) s'inscrit dans une démarche globale de cette nature, dont l'objectif premier est de mieux

comprendre et de quantifier les mécanismes de formation des poussières au four électrique à arc. Elle fait suite au travail de thèse de Jean-Christophe Huber qui avait permis de mettre en évidence les principaux mécanismes de formation. Elle vise en particulier à valider les hypothèses émises par celui-ci quant aux conditions opératoires théoriques permettant de réduire la quantité de poussières produites et à poursuivre la description des transformations qui ont lieu au cours du captage des fumées. Intégrée au contrat de plan Etat-région intitulé « Procédés propres et effluents industriels », elle a reçu le soutien de la Région Lorraine et du CNRS.

La première partie de ce mémoire introduit le contexte industriel dans lequel se place cette étude, à travers une description des filières de fabrication de l'acier et des principales méthodes de gestion et de valorisation des poussières de four électrique.

Dans la deuxième partie, nous proposons une analyse de la bibliographie relative à la caractérisation des poussières et à l'identification des mécanismes de formation. Cette analyse nous amène en particulier à faire la distinction entre l'émission des précurseurs de poussières (vapeurs, gouttelettes liquides, particules solides) et la transformation ultérieure de ces précurseurs en poussières au cours du transport dans le circuit de captage des fumées.

La troisième partie est consacrée au phénomène de projection de gouttelettes liquides par éclatement de bulles de gaz, identifié comme le principal mécanisme d'émission de poussières au four électrique à arc. Nous y présentons les résultats d'une étude expérimentale menée sur un dispositif de laboratoire original permettant de visualiser le processus d'éclatement à la surface de l'acier liquide et de quantifier les émissions qui en découlent.

Enfin, la quatrième partie présente le développement d'un modèle d'agglomération-coalescence, destiné à décrire l'évolution morphologique des poussières au cours de leur transport depuis la surface du bain jusqu'au filtre à manches. Appliqué à un cas typique de four électrique, il montre notamment l'influence des conditions qui règnent au sein des fumées sur les collisions entre particules et sur la formation des agglomérats.

# Chapitre I :

## Contexte de l'étude

### SOMMAIRE

---

<b>I.1. Présentation du four électrique à arc .....</b>	<b>3</b>
I.1.1. La place du four électrique dans les filières de production de l'acier.....	3
I.1.2. Description du four électrique à arc .....	5
I.1.3. Fonctionnement du four électrique à arc .....	7
I.1.4. Production d'acier et émission de poussières .....	8
<b>I.2. Le devenir des poussières de four électrique .....</b>	<b>9</b>
I.2.1. Le stockage en CSDU de classe I.....	9
I.2.2. La réinjection au four électrique.....	9
I.2.3. La valorisation des poussières par la filière pyrométallurgique .....	10
I.2.4. La valorisation des poussières par la filière hydrométallurgique .....	10
<b>I.3. Démarche adoptée .....</b>	<b>11</b>

---

### I.1. PRESENTATION DU FOUR ELECTRIQUE A ARC

#### I.1.1. La place du four électrique dans les filières de production de l'acier

Aujourd'hui, la production d'acier se partage entre deux filières (voir figure 1.1) : la filière classique et la filière électrique. Dans la filière classique, l'acier est fabriqué à partir de minerai de fer et de charbon par passage au haut fourneau puis au convertisseur. Ce procédé nécessite au préalable un traitement du minerai dans une unité d'agglomération et la transformation du charbon en coke. La filière électrique qui utilise les ferrailles recyclées comme matière première est beaucoup plus souple que la filière classique. L'acier sauvage est obtenu directement par fusion des ferrailles et pré-affinage au four électrique à arc. Quelle que soit la filière considérée, l'acier liquide issu du convertisseur ou du four électrique subit ensuite les mêmes étapes d'élaboration : affinage et mise à la nuance par métallurgie secondaire, coulée continue et enfin laminage.

La filière classique est de nos jours le plus souvent exploitée dans des usines intégrées d'une capacité typique de 3 millions de tonnes par an, principalement pour l'élaboration de nuances d'aciers au carbone destinées à la fabrication de produits plats. Mieux à même de répondre à une forte demande en acier, elle a pris son essor à la fin de la Seconde Guerre Mondiale et au cours des 30 glorieuses, période pendant laquelle elle supplante peu à peu les

techniques basées sur le four Bessemer ou le four Martin. Aujourd'hui, elle assure plus de 60 % de la production mondiale d'acier.

La filière électrique est principalement employée pour la production de produits longs courants ou spéciaux et de tôles fortes (inox et aciers spéciaux). Apparue au début du 20<sup>ème</sup> siècle avec le four Héroult, il faut attendre les années 70 pour voir la généralisation de cette technologie. A cette époque, le ralentissement de la demande en acier conduit les sidérurgistes à se tourner vers des filières de production plus courtes nécessitant moins d'investissements que la filière haut fourneau/convertisseur. Le four électrique à arc s'est alors imposé comme le réacteur répondant le mieux à ces exigences. Aujourd'hui, la filière électrique représente plus de 30 % de la production d'acier au niveau mondial, une part en constante augmentation du fait de la généralisation du recyclage de l'acier.

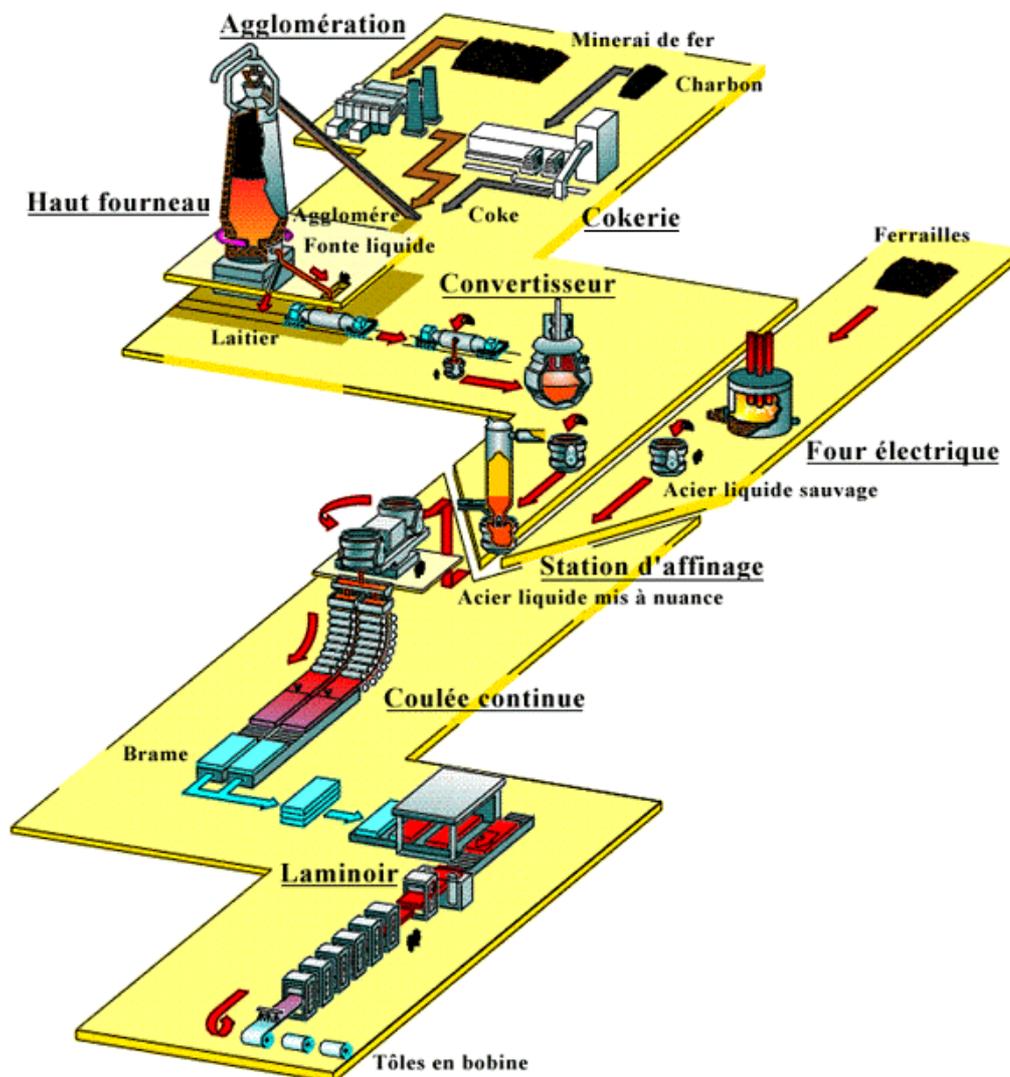
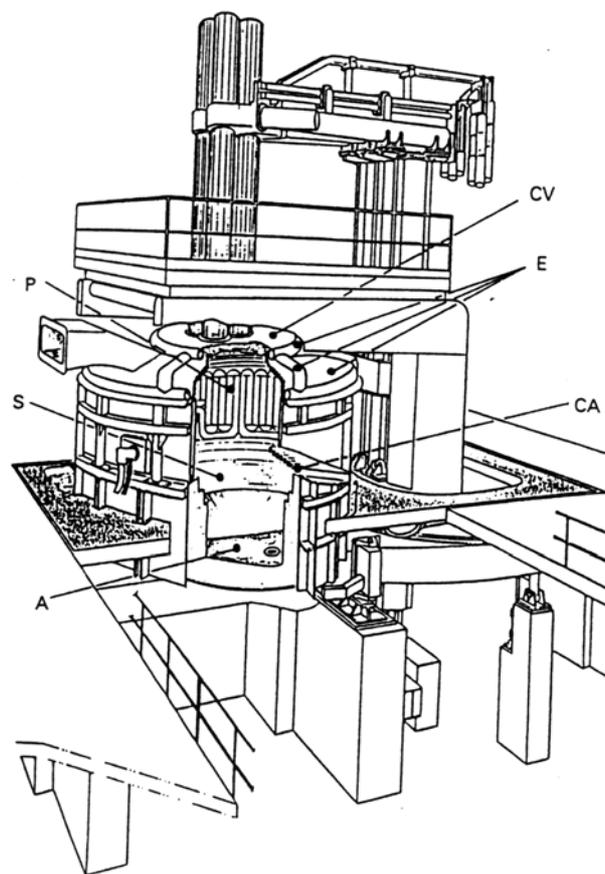


Figure 1.1 : Les deux filières de production d'acier (document Usinor)

## I.1.2. Description du four électrique à arc

### *Description générale*

Le four électrique à arc est généralement alimenté en courant alternatif (AC). Cependant, depuis le début des années 90, l'emploi du courant continu (DC), qui génère moins de perturbations sur le réseau électrique, a connu un essor important et commence à se généraliser un peu partout dans le monde. Si la capacité de chargement d'un four électrique à arc peut varier de 1 à 400 tonnes, la majorité des fours ont aujourd'hui une capacité comprise entre 70 et 120 tonnes. La figure 1.2 donne une représentation schématique d'un four électrique à arc. Celui-ci est constitué d'une cuve en acier garnie de réfractaires basiques (magnésie-dolomie), d'électrodes en graphite (3 pour les fours AC, 1 pour les fours DC) et d'un circuit de captage des fumées.



- A avant-croset (bénitier) permettant la coulée par trou excentré
- CA couvercle de l'avant croset à circulation d'eau
- CV centre de voûte en réfractaire
- E éléments de voûte à circulation d'eau
- P panneaux de cuve à circulation d'eau
- S sole réfractaire

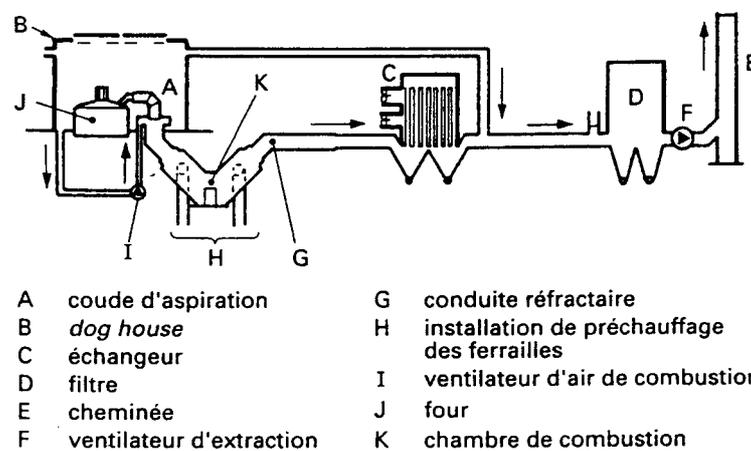
**Figure 1.2 :** Représentation schématique d'un four électrique (document Clecim)

Les parois ainsi que la voûte du four sont composées de panneaux refroidis par circulation d'eau (voir figure 1.2). La paroi est équipée d'une porte mobile et, parfois,

d'ouvertures spécifiques destinées au passage de lances à oxygène, de charbon... La voûte est percée pour permettre l'insertion des électrodes soutenues par une potence et maintenues par des pinces qui assurent également le passage du courant. L'ouverture de la voûte par un mouvement de levée puis de rotation permet de charger le four par déversement des paniers de ferrailles. L'ensemble de la cuve peut être basculé soit en arrière pour le décrassage du laitier par la porte, soit en avant pour la coulée.

La voûte est percée d'un quatrième trou relié à une conduite coudée (appelée « coude ») destinée à l'aspiration des fumées. Celle-ci est solidaire de la voûte et se positionne en face de la conduite de captage des fumées (voir figure 1.3). L'espace entre ces deux conduites (appelé « gap ») est ajustable de façon à moduler l'entrée d'air qui assure une partie de la combustion du monoxyde de carbone (CO) émis au cours de l'élaboration. A partir du *gap*, les fumées sont aspirées dans une chambre de combustion qui garantit l'élimination des imbrûlés et évite les risques d'explosion. Elles sont ensuite refroidies par passage dans un échangeur « water-jacket » puis éventuellement par dilution à l'aide d'un apport d'air froid. Enfin les poussières présentes dans les fumées sont capturées par des filtres à manche et les gaz sont rejetés à la cheminée.

Le système de captage comprend également un dispositif de récupération des fumées secondaires émises à l'ouverture de la voûte pendant les chargements, ainsi que pendant la coulée et le décrassage. Il s'agit le plus souvent d'une enceinte appelée « dog house », entourant le four et reliée au circuit de captage primaire. Les fumées secondaires ainsi captées sont utilisées pour la dilution des émissions du four.



**Figure 1.3 :** Représentation d'un circuit de captage des fumées (document Clecim)

### **Equipements auxiliaires**

Outre les éléments de base décrits précédemment, les fours électriques à arc comprennent également un certain nombre d'équipements auxiliaires parmi lesquels des brûleurs oxyfuel, des dispositifs d'insufflation d'oxygène ou des systèmes de récupération de chaleur destinés au préchauffage des ferrailles.

Les brûleurs oxyfuel, dont l'utilisation s'est généralisée depuis une vingtaine d'années, fournissent une énergie thermique supplémentaire, notamment aux fours de moyenne puissance. Sur les fours de haute puissance, leur adjonction permet d'obtenir une fusion de la charge plus régulière et donc plus rapide grâce à un préchauffage des zones froides qui subsistent entre les électrodes. Ces brûleurs utilisent le plus souvent des huiles légères ou du gaz naturel. Généralement au nombre de trois, ils sont placés entre les électrodes et fonctionnent avec un excès d'oxygène.

L'insufflation d'oxygène au four électrique à arc se fait à l'aide de lances d'injection introduites dans le four par la porte de décrassage et/ou par des trous prévus à cet effet dans la cuve du four. L'oxygène injecté est destiné à provoquer la décarburation du bain métallique. Pratiquée pendant la fusion, l'insufflation d'oxygène permet également de brûler le carbone mis en charge et accélère ainsi la fusion. Dès la formation d'un bain liquide suffisant, elle peut être combinée à une insufflation de charbon granulé afin d'obtenir un laitier moussant. L'arc électrique est alors noyé dans le laitier ce qui permet d'améliorer le rendement thermique du four en évitant les pertes d'énergie dues au rayonnement de l'arc sur les parois du four.

L'utilisation des brûleurs oxyfuel et de l'insufflation d'oxygène n'est pas sans conséquence sur le fonctionnement du four électrique. Elles entraînent notamment une augmentation des pertes thermiques par les fumées chaudes. Les aciéristes ont depuis longtemps cherché à récupérer une partie de cette énergie pour le préchauffage des ferrailles malgré les complications pratiques qu'un tel dispositif peut entraîner. Parmi les technologies en cours de développement, on peut citer le système « shaft » et le système « Consteel », tous deux basés sur une alimentation respectivement discontinue et continue du four en ferrailles préchauffées.

### **I.1.3. Fonctionnement du four électrique à arc**

Les différentes étapes de fonctionnement typique d'un four électrique à arc sont les suivantes :

- enfournement du panier de ferrailles,
- fusion, souvent accélérée par des brûleurs oxyfuel ou par insufflation d'oxygène,
- phase d'affinage (déphosphoration par réaction du métal liquide avec le laitier, décarburation par injection d'oxygène dans le bain métallique, élimination des gaz dissous grâce à l'effet de lavage des bulles de CO) ?
- moussage naturel du laitier (bulles provenant de la décarburation du bain) puis assistance du moussage par injection, dans le laitier, de charbon en poudre et d'oxygène qui réagissent en formant des bulles,
- décrassage partiel, le plus souvent par débordement naturel du laitier moussant par la porte,
- contrôle de la température du bain, de l'activité en oxygène, analyse d'un échantillon de métal prélevé et ajustements éventuels,
- coulée.

L'ensemble de ce processus est précédé d'une étape de préparation des charges introduites dans le four. La plus grosse partie de la charge initiale est constituée de ferrailles soigneusement triées auxquelles on ajoute parfois du minerai pré-réduit et/ou de la fonte solide. Elle est introduite dans le four à l'aide d'un ou plusieurs paniers. Certains fours électriques sont équipés de dispositifs particuliers permettant d'introduire de la fonte liquide.

D'autres types d'additions sont également réalisées au cours du procédé de fusion et d'élaboration parmi lesquelles on peut citer :

- la chaux et les fondants servant à la constitution du laitier initial, qui peuvent être chargés dans les paniers à ferrailles ou introduits dans le four par un trou situé dans la voûte,
- les ferro-alliages et produits divers destinés à la désoxydation, à la désulfuration et à la mise au point de la composition de l'acier.

Le tableau 1.1 présente un exemple de paramètres de fonctionnement d'un four électrique industriel.

**Tableau 1.1 :** Valeurs de quelques paramètres relevées lors de la coulée n° 45857 du 11/5/96 au four électrique de Gandrange [d'après Huber (2000)]

<b>Enfournement</b>		<b>Injection</b>	<i>Fusion (14 min)</i>	<i>Affinage (22 min)</i>
Fonte liquide	40 tonnes	Oxygène	1794 Nm <sup>3</sup>	1924 Nm <sup>3</sup>
Ferrailles	133,4 tonnes	Charbon	126 kg	410 kg
Chaux	2 tonnes			
<b>Acier coulé</b>	158 tonnes	<b>Energie électrique</b>	30110 kWh	24380 kWh

#### **I.1.4. Production d'acier et émission de poussières**

Au niveau mondial, la production d'acier par la filière électrique est passée de 90 millions de tonnes en 1970 à 300 millions de tonnes en 1999. Cette augmentation s'est accompagnée d'un accroissement des quantités de poussières émises de 4 à 6 % par an. Ainsi, en 1999, la quantité totale de poussières provenant des fours électriques à arc était d'environ 3,7 millions de tonnes. Aujourd'hui, on estime qu'elle pourrait excéder 5 millions de tonnes par an à partir de l'année 2006, ce qui représente un volume considérable de déchets. Ceux-ci sont classés dans la catégorie des déchets toxiques par la plupart des législations qui imposent leur stockage dans des conditions très strictes (voir ci-dessous). En Europe, l'élaboration d'acier au four électrique a généré en 1999 près d'un million de tonnes de poussières, dont environ 80 % provenaient d'Allemagne, de France, d'Espagne et d'Italie.

## **I.2. LE DEVENIR DES POUSSIÈRES DE FOUR ÉLECTRIQUE**

### **I.2.1. Le stockage en CSDU de classe I**

A l'heure actuelle, la majorité des poussières de four électrique sont encore considérées comme des déchets et sont stockées dans des Centres de Stockage des Déchets Utiles (CSDU) de classe I. Ces sites sont habilités à recevoir des déchets toxiques. Ils ont été choisis en raison de la nature géologique et hydrogéologique particulière des sols, afin d'éviter tout transfert de pollution vers les nappes phréatiques ou vers les eaux superficielles. C'est en raison de leur composition, et notamment leur teneur en métaux lourds lixiviables (Zn, Pb, Cd...), que les poussières sont rangées parmi les déchets toxiques.

En théorie, le stockage est considéré comme une solution ultime, envisageable uniquement lorsque toutes les autres solutions de valorisation ou de détoxification ont été épuisées. En pratique, les coûts de stockage en CSDU sont inférieurs à ceux engendrés par les autres méthodes de traitement ou de recyclage, si bien qu'en dehors de quelques pays dotés de législations contraignantes en matière de gestion des déchets, la mise en décharge des poussières reste encore la solution privilégiée par la majorité des sidérurgistes.

### **I.2.2. La réinjection au four électrique**

Le recyclage des poussières consistant à les réinjecter au four électrique à arc au cours du procédé d'élaboration est déjà pratiqué dans les aciéries inox, mais pratiquement pas dans les aciéries élaborant des aciers ordinaires ou spéciaux. Cette méthode a pour principaux intérêts :

- l'augmentation de la teneur en zinc des poussières pour permettre leur valorisation dans les filières de récupération du zinc (voir ci-après),
- la réduction de la quantité totale de poussières,
- la récupération du fer contenu dans les poussières.

De nombreux essais sont menés actuellement à travers le monde afin de mettre au point un dispositif de réinjection efficace et économiquement viable. Les principales techniques sont l'injection pneumatique des poussières et l'enfournement des poussières sous forme compactée.

L'injection pneumatique, qui a lieu pendant la phase d'affinage, consiste à souffler dans le bain un mélange de poussières et de charbon. Le charbon sert d'une part à fluidifier les poussières pour faciliter leur transport et d'autre part à réduire les oxydes contenus dans les poussières. L'utilisation de cette technique se heurte à des difficultés liées à la manipulation des poussières et au risque de réenvol des particules les plus fines au cours de l'injection. Le contrôle de la granulométrie et de la morphologie des poussières doit donc être pris en compte lors de la mise en œuvre de ce procédé de recyclage.

Il existe à ce jour deux méthodes de compactage des poussières en vue d'un enfournement au four électrique à arc. La première consiste à mélanger du charbon, un liant et les poussières dans un tambour ou une « bétonneuse » de manière à obtenir un produit

solide appelé « boulets ». La deuxième consiste à former des « boulettes » à partir de poussières et d'eau (environ 10 % de la masse des poussières). Les boulets et les boulettes sont ensuite enfournés dans les paniers de ferrailles. Ces deux méthodes nécessitent la mise en place d'un équipement spécifique de boulettage des poussières.

Des essais conduits sur différents sites ont mis en évidence l'augmentation de la teneur en zinc des poussières générée par l'utilisation de ces techniques et l'intérêt économique qui en découle. Malgré cela, ces procédés sont encore rarement utilisés.

### **I.2.3. La valorisation des poussières par la filière pyrométallurgique**

Les procédés pyrométallurgiques de recyclage sont basés sur la réduction et/ou la volatilisation des composés métalliques contenus dans les poussières, à des températures dépassant 1000 °C. Actuellement, 80 % de la quantité totale de poussières traitées en vue d'une valorisation du zinc passe par cette filière.

Le procédé Waelz est probablement la technique la plus ancienne et la plus éprouvée : les poussières sont tout d'abord réduites dans un four tournant afin de séparer les éléments volatils tels que le zinc qui sont ensuite réoxydés. On obtient alors des oxydes de zinc et de plomb destinés à la métallurgie des non-ferreux (haut fourneau à zinc : Imperial Smelting Furnace) et une scorie (laitier) inerte riche en fer.

Bien qu'il soit considéré comme la méthode de valorisation des poussières la plus satisfaisante existant à ce jour, il est extrêmement coûteux en termes économiques mais également environnementaux, ce qui constitue pour le moins un paradoxe. Ainsi, les usines exploitant le procédé Waelz sont souvent éloignées des aciéries, ce qui nécessite le transport des poussières depuis leur site de production. Par ailleurs, le procédé Waelz appliqué aux poussières de four électrique ne permet pas d'obtenir des oxydes de zinc de bonne qualité ; ceux-ci contiennent le plus souvent des chlorures et des fluorures alcalins et parfois du fer, ce qui rend difficiles et coûteux leur traitement dans les hauts fourneaux à zinc. Il génère également une scorie pour laquelle les possibilités de valorisation sont faibles et qui est, le plus souvent, stockée en CSDU de classe I. Enfin, il ne faut pas oublier les risques d'émissions de dioxine liés à ce procédé.

Il existe d'autres variantes du procédé Waelz, mais aucune d'entre elles n'a atteint le degré de développement industriel de celui-ci, qui, exploité par des sociétés proches de l'industrie du zinc, occupe, du moins en Europe, une position commerciale dominante.

### **I.2.4. La valorisation des poussières par la filière hydrométallurgique**

Cette deuxième filière, encore émergente, est basée sur la mise en solution du zinc contenu dans les poussières. La solution riche en zinc est ensuite utilisée pour former du zinc métallique par électrolyse. Plusieurs procédés, utilisant différents réactifs, ont déjà été testés à l'échelle pilote et semblent techniquement et économiquement crédibles.

Ainsi le procédé REZEDA en France (développé par Arcelor en collaboration avec Union Minière) consiste à lessiver par un bain de soude le zinc et le plomb contenus dans les poussières puis à les mettre en solution. Le plomb est ensuite séparé par cémentation et le zinc est extrait par électrolyse. Après plusieurs traitements complémentaires de lavage et de séchage, on obtient une poudre de zinc métallique de haute qualité. Le procédé ZINCEX développé en Espagne est basé sur une lixiviation des poussières à l'acide sulfurique, une extraction liquide/liquide par un solvant, une régénération du solvant puis une extraction du zinc par électrolyse. On peut également citer les procédés Ezinex mis au point en Italie et MRT aux USA.

L'essor de cette filière semble aujourd'hui limité par la difficulté d'extraction du zinc contenu dans les ferrites de zinc de structure spinelle, présents en grande quantité dans les poussières de four électrique. Sous cette forme, le zinc possède une solubilité si faible qu'en pratique seul le zinc sous forme zincite est extrait lors du traitement des poussières par les procédés hydrométallurgiques. Le partage du zinc entre ces deux phases lors de la formation des poussières, est donc un paramètre clé du rendement potentiel des traitements de valorisation par voie hydrométallurgique.

### **I.3. DEMARCHE ADOPTÉE**

Comme nous l'avons déjà précisé en introduction, l'objectif de l'étude menée au LSG2M en collaboration avec l'IRSID est de mieux comprendre la formation des poussières afin de proposer des pistes de progrès quant à la maîtrise des émissions et l'amélioration de la part valorisable. Lors de son doctorat qui portait sur le même thème, Jean-Christophe Huber [Huber (2000)] a défriché et analysé l'ensemble de la problématique. Il a pu hiérarchiser les différents mécanismes d'émission et de transformation des poussières. A partir de calculs thermodynamiques, il a aussi proposé une stratégie pour augmenter la part valorisable des poussières de four électrique. Forts des résultats qu'il avait obtenus, nous avons pu cibler nos recherches, les orientant vers la réduction des émissions plutôt que vers la valorisation des poussières, et approfondir l'étude des phénomènes prépondérants. Ainsi, nous avons en premier lieu cherché à analyser en détail le phénomène d'éclatement de bulles de gaz à la surface d'un bain liquide (acier ou eau). Dans un deuxième temps, nous avons cherché à mieux comprendre le devenir des projections au cours de leur transport dans le système de captage, en développant un modèle mathématique d'agglomération-coalescence décrivant l'évolution de leur morphologie et de leur granulométrie. Nous verrons comment, dans ces deux cas, l'étude des mécanismes fondamentaux fournit des éléments de réponse aux problèmes industriels et environnementaux.



# Chapitre II :

## Les mécanismes de formation des poussières

### SOMMAIRE

---

<b>II.1. Caractérisation des poussières.....</b>	<b>13</b>
II.1.1. Caractérisation physico-chimique des poussières.....	13
II.1.2. Caractéristiques morphologiques.....	17
II.1.3. Conclusion.....	26
<b>II. 2. Etude bibliographique des mécanismes de formation .....</b>	<b>26</b>
II.2.1. Identification des mécanismes de formation.....	26
II.2.2. L'émission de précurseurs de poussières .....	30
II.2.3. La transformation des précurseurs en poussières.....	38
II.2.4. Conclusion.....	44

---

### II.1. CARACTERISATION DES POUSSIERES

#### II.1.1. Caractérisation physico-chimique des poussières

##### *Composition chimique*

La composition chimique des poussières de four électrique est complexe et extrêmement variable. Elle diffère parfois de façon importante d'un four à l'autre, d'une coulée à l'autre et même au cours du cycle de fusion-affinage. La composition de la charge, qui dépend de la nature et de la qualité des ferrailles, mais également de l'utilisation de fonte liquide ou de pré-réduits, joue un rôle important dans la composition ultérieure des poussières. De même, la conduite du four (nature de l'injection d'oxygène, qualité du moussage du laitier, durée de l'affinage, réglage de l'aspiration des fumées...) peut influencer la formation des poussières et entraîner une variation de leur composition.

Le fer et le zinc sont les deux éléments principaux mais également ceux dont les teneurs varient le plus. Outre le zinc, d'autres métaux lourds tels que le plomb, le cadmium, le chrome sont présents en quantité non négligeable. Ce sont ces éléments qui confèrent aux poussières de four électrique leur caractère toxique pour l'environnement et la santé. Par ailleurs, on y trouve également du manganèse, du silicium, du calcium ainsi que du nickel dont la teneur dans les poussières dépend fortement de la nature de l'acier élaboré (acier au carbone ou acier inoxydable).

De nombreux exemples d'analyses chimiques sont disponibles dans la littérature (voir revue bibliographique de Huber (2000)). Les techniques analytiques utilisées sont

principalement l'ICP (Inductively Coupled Plasma) et l'absorption atomique (AA). Le tableau 2.1 présente les résultats obtenus par Tsai et Li (1989) sur plusieurs échantillons de poussières.

**Tableau 2.1 :** Exemples d'analyses chimiques réalisées par absorption atomique sur plusieurs échantillons de poussières [Tsai et Li (1989)]

	Lot 1	Lot 2	Lot 3	Lot 4	Lot 5	Lot 6	Lot 7	Lot 8	Lot 9	Lot 10
<b>Fe</b>	18,7	30,32	27,2	22,7	28,78	37,11	19,93	18,95	15,02	22,38
<b>Zn</b>	24,6	20,73	6,83	26,85	20,16	12,08	22,50	24,65	7,31	27,32
<b>Mn</b>	2,04	3,74	6,4	2,49	2,76	3,18	1,55	3,84	7,65	2,77
<b>Pb</b>	1,7	1,9	1,66	2,12	1,61	0,68	2,56	2,16	0,72	2,93
<b>Cr</b>	0,22	0,30	0,41	0,18	0,19	0,28	0,23	0,38	0,34	0,62
<b>Cu</b>	0,20	0,22	0,11	0,32	0,32	0,26	0,24	0,35	0,23	0,28
<b>Ca</b>	4,29	1,93	3,07	0,94	2,50	4,97	2,52	2,27	7,99	2,27
<b>Si</b>	1,42	1,71	4,51	1,23	1,83	1,36	1,17	1,38	1,27	1,32
<b>Ni</b>	0,023	0,022	0,045	0,031	0,032	0,055	0,031	0,043	0,31	0,029
<b>Cd</b>	0,11	0,054	0,018	0,22	0,19	0,098	0,036	0,96	0,019	0,033

*Les teneurs sont exprimées en %massique*

L'ensemble des analyses de poussières proposées dans la littérature présente des fluctuations importantes, et leur comparaison est souvent délicate. En effet, le nombre d'éléments analysés varie selon les études, des espèces les plus communes aux plus rares, ce qui peut entraîner des défauts de bouclage [Ravaine (1997)]. Huber (2000) a résumé les résultats analytiques disponibles et proposé une composition chimique moyenne représentative des poussières de four électrique à arc présentée dans le tableau 2.2. A partir de ces données, on peut constater la diversité des phases d'origine des poussières : des éléments provenant essentiellement du métal comme Ni, Mo, côtoient des éléments provenant du laitier comme Si, Ti, Zr, Ca, ou encore des volatils tels Zn, Pb, Hg, Cd.

**Tableau 2.2 :** Composition chimique typique de poussières de four électrique estimée à partir de résultats analytiques issus de plusieurs études [Huber (2000)].

<b>Eléments majeurs</b>	Fe	30 à 50 %
	Zn	10 à 45 %
<b>Eléments mineurs</b>	Ca, Si, Mg	1 à 6 %
	Ni, Cr	aciers au carbone : < 1 %, aciers inoxydables : 2 à 5 %
	Na, K, Cl	aciers au carbone : < 1 %, aciers inoxydables : 2 à 8 %
	Pb, Mn	1 à 3 %
<b>Traces</b>	Cd, Mo, Bi	< 1 %

*Les teneurs sont exprimées en % massique.*

## Minéralogie des poussières

Les techniques utilisées pour étudier la minéralogie des poussières de four électrique sont extrêmement variées : diffraction des rayons X, caractérisation par RLM (Reflected Light Microscopy) pour les particules dont la taille est supérieure à quelques micromètres, SEM-EDS (Scanning Electron Microscopy - Electron Diffraction Scattering), EPMA (Electron Probe Microanalysis), TEM-EDS (Transmission Electron Microscopy - Electron Diffraction Scattering) et TEM-EDP (Transmission Electron Microscopy - Electron Diffraction Pattern) pour les particules les plus fines, spectroscopie Mössbauer pour les phases du fer. La figure 2.1 présente une évaluation de l'importance des phases principales obtenue par Hagni (1995) à partir des pics de diffraction des rayons X.

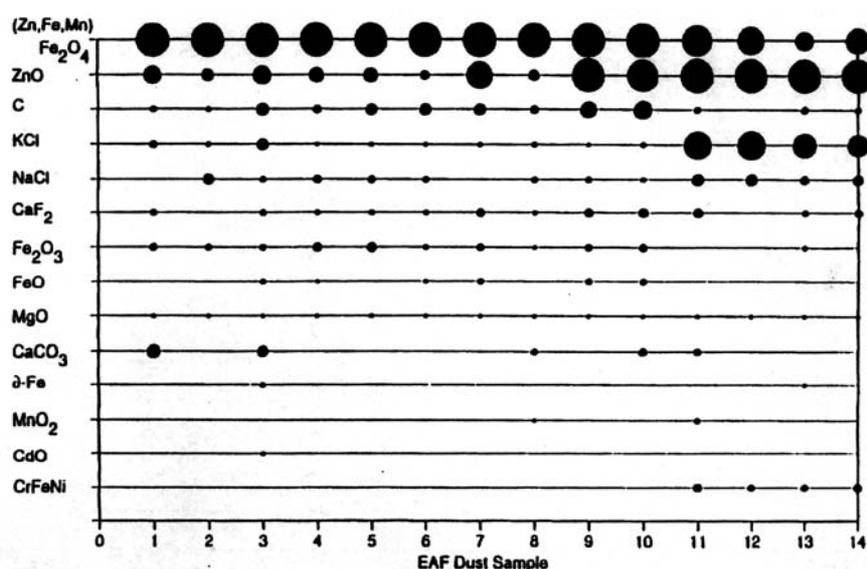


Figure 2.1 : Intensité des pics de diffraction des RX pour 14 échantillons de poussières [Hagni (1995)]

Ces résultats ainsi que ceux présentés par d'autres auteurs, montrent que les phases majeures détectées dans les poussières de four électrique sont :

- des oxydes ayant une structure de type spinelle  $(\text{Fe,Zn,Mn})\text{Fe}_2\text{O}_4$ ,
- l'hématite  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,
- la zincite  $\text{ZnO}$ ,
- des phases vitreuses à base de Fe, Si, Ca.

Comme pour l'analyse chimique, la quantification exacte des différentes phases reste problématique. En effet, leur nature dépend de la composition de la charge, mais aussi de la composition et de la température du gaz porteur qui peuvent varier en fonction de la conduite du four. Le caractère plus ou moins réducteur de l'atmosphère gazeuse joue notamment un rôle prépondérant dans la composition minéralogique des poussières de four électrique. Néanmoins, les résultats d'analyses menées sur des lots de poussières par différents auteurs permettent de préciser la minéralogie des éléments les plus importants que sont le fer, le zinc et le calcium.

Ainsi, Arion et al. (1998) ont montré que le fer se présente essentiellement sous forme trivalente correspondant soit à l'hématite  $Fe_2O_3$ , soit aux ferrites  $(Fe, Zn, Mn, Ca)O \cdot Fe_2O_3$ . Le fer divalent indiquant la présence de magnétite n'est présent qu'en très faible quantité dans les poussières analysées.

Le partage du zinc entre ses différentes phases est d'une importance particulière pour la valorisation des poussières dans la métallurgie d'élaboration du zinc. En effet, la zincite est facilement valorisable par lixiviation tandis que les autres phases ne le sont pas. D'après Tsai et Li (1989), le zinc se partage essentiellement entre la phase zincite ( $ZnO$ ) et la phase ferrite de zinc ( $ZnO \cdot Fe_2O_3$ ), les autres phases ( $Zn$ ,  $ZnSiO_4$  et  $ZnSO_4$ ) représentant une part négligeable des poussières. Huber (2000) a synthétisé l'ensemble des résultats de quantification proposés dans la littérature ainsi qu'un certain nombre d'analyses réalisées à l'IRSID. La figure 2.2 schématise cette synthèse et montre que lorsque la teneur totale en zinc augmente, celui-ci tend à se retrouver préférentiellement sous la forme zincite au détriment du ferrite de zinc. Ce résultat est conforme aux calculs thermodynamiques. Lorsque la teneur en zinc dans les poussières dépassent 20 %, le partage du zinc se fait suivant un rapport moyen 70/30 : 70 % sous forme zincite et 30 % sous forme ferrite de zinc.

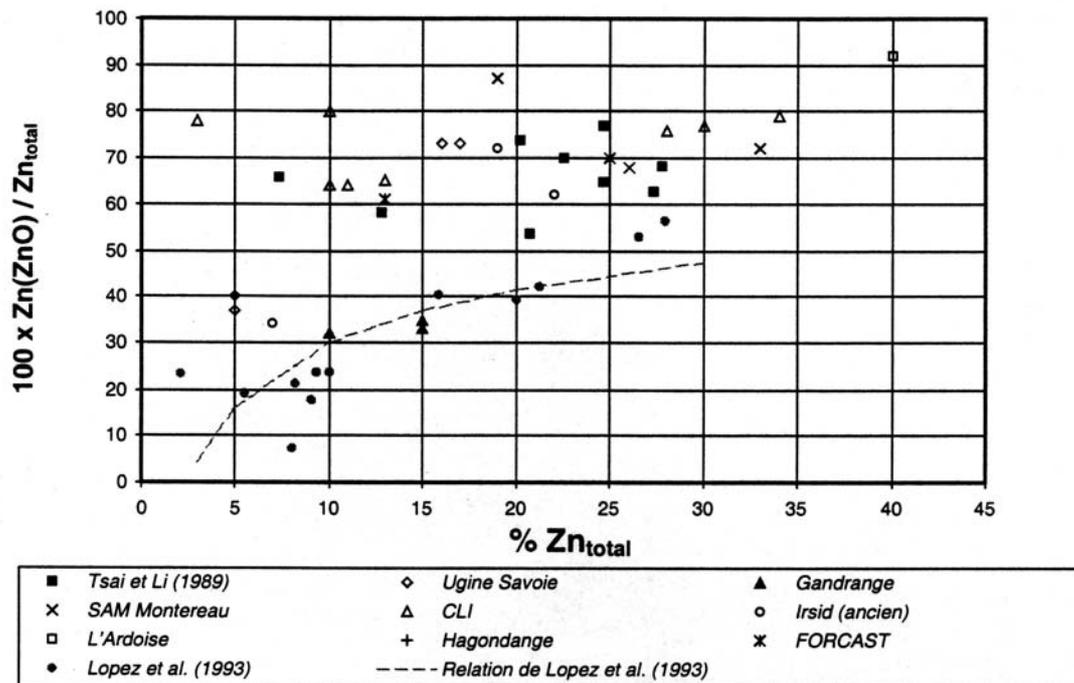


Figure 2.2 : Influence de la teneur totale en zinc sur le partage du zinc entre zincite et ferrite de zinc [Huber (2000)]

Arion et al. (1998) ont également caractérisé les différentes phases du calcium, montrant que cet élément est présent soit sous forme de chaux libre, soit lié à des espèces comme la silice. La teneur totale en chaux ainsi que la répartition des deux types de phases sont étroitement liées à la nature des additions de chaux comme le montre le tableau 2.3. Ces résultats suggèrent que la chaux présente dans les poussières sous forme de chaux libre

provient d'un envol direct d'une partie de la poudre de chaux introduite dans le four, alors que la chaux liée à la silice correspond vraisemblablement à des projections de laitier liquide.

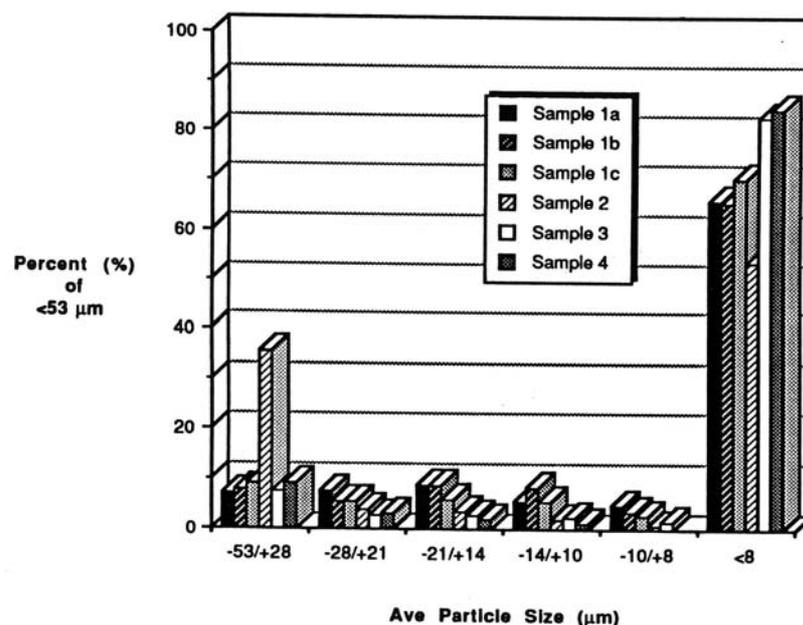
**Tableau 2.3 :** Teneurs en chaux totale et en chaux libre : deux exemples caractéristiques [Arion et al. (1998)]

Site	Additions de chaux	% CaO total	% CaO libre
5	Chaux en poudre	15,5	8,7
6	Chaux en roche	7,0	< 0,1

## II.1.2. Caractéristiques morphologiques

### *Granulométrie*

Plusieurs auteurs ont tenté de caractériser la taille des particules contenues dans les poussières de four électrique à arc en utilisant diverses techniques granulométriques. Le tamisage et le cyclonage sont les plus courantes, mais quelques études présentent également des résultats obtenus par granulométrie laser. La figure 2.3 montre les résultats de séparations granulométriques par cyclonage obtenus par Hagni et al. (1993) sur des poussières de four électrique à arc. Les échantillons caractérisés ont été préalablement soumis à un tamisage afin d'isoler la fraction de particules dont la taille est supérieure à 53  $\mu\text{m}$ .



**Figure 2.3 :** Séparation par hydrocyclones : distribution de taille des poussières de four électrique à arc (% en masse) [Hagni et al. (1993)]

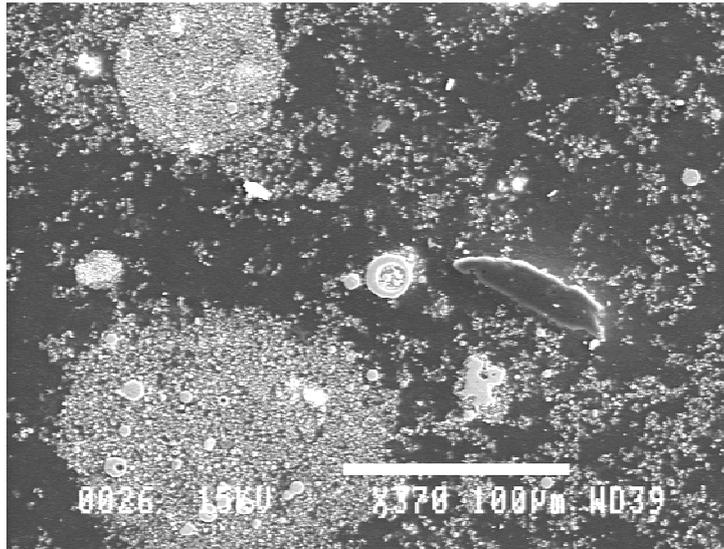
Comme le montre Huber (2000), l'interprétation des mesures granulométriques est souvent très délicate. Tout d'abord, chacune des techniques utilisées est basée sur la mesure d'une grandeur particulière (la section pour le tamis, la force de traînée pour le cyclonage, le volume pour la diffraction laser) ce qui rend difficile la comparaison des différents résultats. Par ailleurs, les analyses granulométriques effectuées en voie sèche ou en voie humide présentent souvent des résultats différents. Le protocole opératoire joue également un rôle important notamment dans la désagglomération des poussières. Enfin, il convient toujours de s'interroger sur la signification et la portée de telles mesures. En effet, plus encore que les compositions chimiques ou minéralogiques, les caractéristiques granulométriques des échantillons varient énormément en fonction des conditions opératoires du procédé. En particulier, la présence des grosses particules ainsi que l'agglomération plus ou moins forte des poussières sont étroitement liées aux conditions d'aspiration dans le circuit de captage (dimensionnement, débit, température...).

Néanmoins, une caractéristique essentielle commune à l'ensemble de ces mesures peut être dégagée : la majeure partie des poussières est constituée de fines particules ; 80 % (en masse) ont une taille inférieure à 20  $\mu\text{m}$  et tous les lots analysés présentent un mode inférieur à 5  $\mu\text{m}$  voire à 1  $\mu\text{m}$ . Les mesures de surface spécifique réalisées par la méthode BET [Tsai et Li (1989)] confirment ces résultats (voir tableau 2.4).

**Tableau 2.4 :** Surface spécifique et diamètre équivalent de poussières de four électrique, d'après Tsai et Li (1989)

Code usine	Surface spécifique en $\text{m}^2/\text{g}$ (BET)	Diamètre équivalent ( $\mu\text{m}$ )
B'	1,8248	0,86
D'	1,1768	1,40
G'	0,8398	1,79
H'	0,8535	1,91

A ces techniques granulométriques, on peut également associer l'observation des poussières par microscopie électronique, ce qui permet de vérifier d'une manière qualitative les grandes tendances données par les mesures de granulométrie. La figure 2.4 obtenue par Huber (2000) au microscope électronique à balayage (MEB) illustre les résultats présentés précédemment : les particules observées couvrent un large spectre de tailles correspondant à celui donné par les mesures granulométriques (de moins de 1  $\mu\text{m}$  à plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$ ).

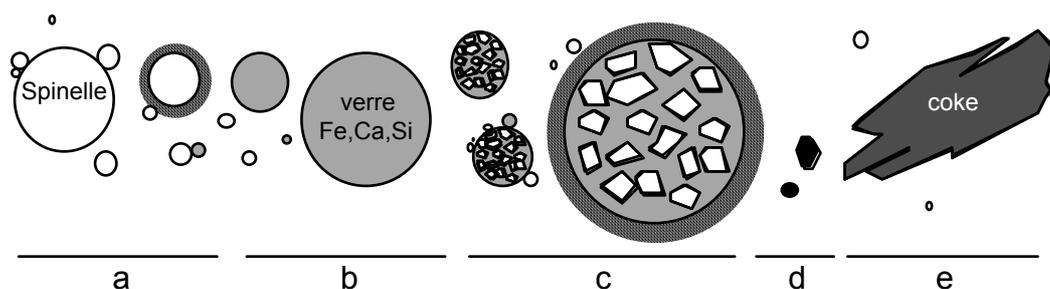


**Figure 2.4 :** Micrographie d'un échantillon de poussières de four électrique à arc vu en coupe au MEB [Huber (2000)]

La microscopie électronique à balayage, comme d'ailleurs la microscopie électronique en transmission, présente également l'avantage d'associer aux techniques d'imagerie la caractérisation des éléments et des phases présents dans les particules. Ces outils ont été utilisés par de nombreux auteurs [Cruells et al. (1992), Porter et al. (1982) ], Li et Tsai (1993), Lopez et al. (1993), Hagni (1995), Huber (2000)] afin de mettre en évidence les différents types morpho-minéralogiques présents dans les poussières. Pour en faciliter l'inventaire, nous proposons de distinguer par la suite les particules discrètes d'une part et les assemblages de particules discrètes d'autre part.

### *Morphologie des particules discrètes*

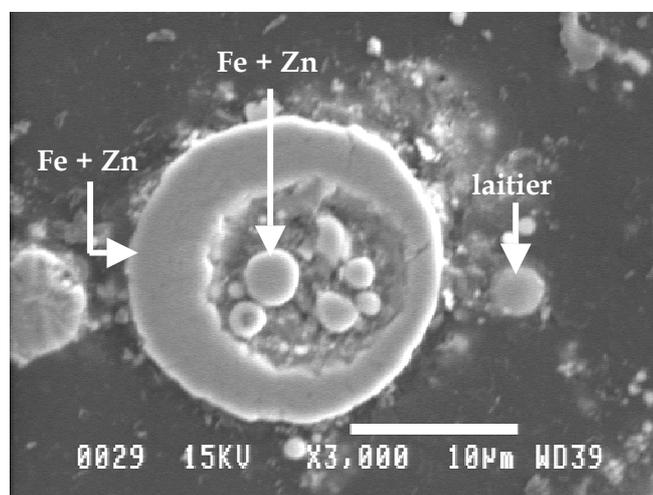
On appelle particule discrète les particules élémentaires qui sont à la base de la formation des amas agglomérés présents dans les poussières brutes. Hagni (1995) recense cinq grandes catégories de particules présentes dans les poussières de four électrique à arc. Huber (2000) adopte également cette classification (voir figure 2.5) tout en associant à chacun des types répertoriés un mécanisme de formation.



- a* : particule sphérique à structure spinelle  
*b* : particule sphérique de composition proche de celle du laitier  
*c* : particule sphérique constituée de grains cristallins noyés dans une matrice vitreuse  
*d* : particule composée d'éléments volatils  
*e* : grosse particule de forme irrégulière

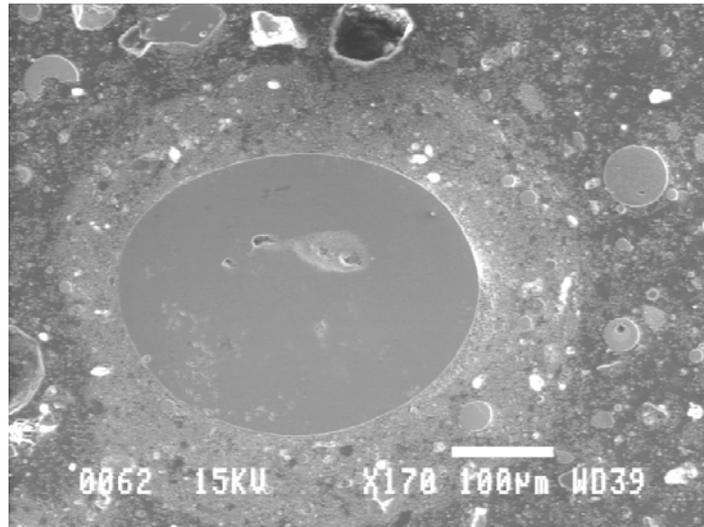
**Figure 2.5** : Représentation schématique des différents types de poussières [Huber (2000)]

Les sphères de *type a* ont une taille qui varie de quelques dixièmes à quelques dizaines de micromètres. Elles sont souvent creuses lorsque leur taille dépasse quelques micromètres (voir figure 2.6) et présentent une composition homogène correspondant, pour les éléments métalliques, à celle du bain d'acier avec un enrichissement en zinc. Leur formation est attribuée aux projections fines de gouttes de métal émises lors de l'éclatement des bulles de CO générées par la décarburation (cf. § II.2.1). Lors du transport des fumées, ces gouttelettes d'acier s'oxydent en magnétite ou en hématite et s'associent au zinc pour former des ferrites de zinc à structure spinelle.

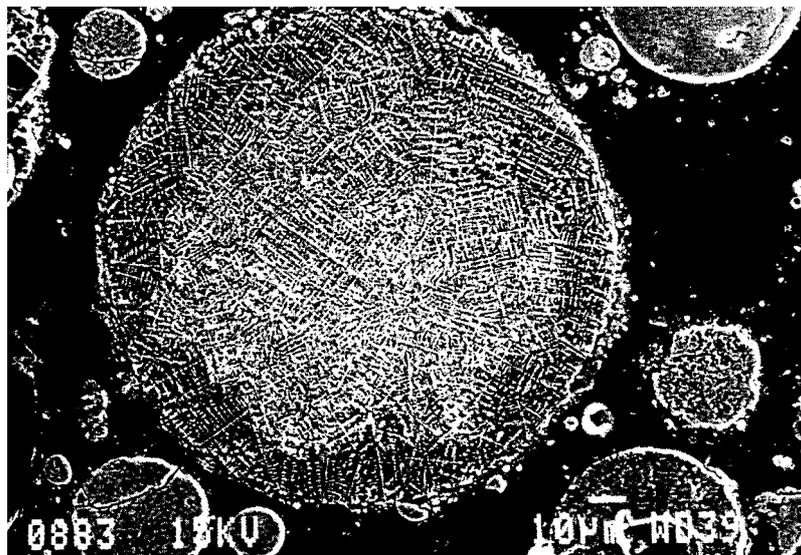


**Figure 2.6** : Diverses sphères de composition homogène [Huber (2000)]

Les particules de *type b*, de forme sphérique, présentent une composition proche de celle du laitier. Elles peuvent être de composition homogène (voir figure 2.6 – particule de droite – et 2.7) ou présenter des dendrites riches en fer (figure 2.8). Dans ce dernier cas, il peut s'agir aussi bien de la solidification d'un laitier riche en fer que d'un laitier contenant des gouttelettes de fer.



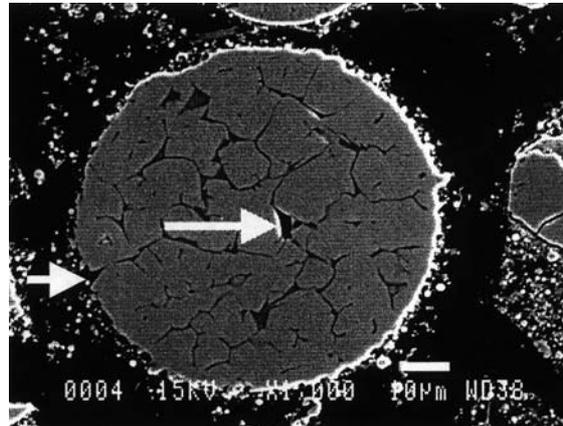
**Figure 2.7 :** Vue en coupe d'une particule sphéroïdale de composition proche de celle du laitier ; présence d'une épaisse couronne autour de la particule [Huber (2000)]



**Figure 2.8 :** Microstructure dendritique [Lopez et al. (1993)]

Comme les précédentes, ces particules proviennent d'un phénomène de projection, mais ici de gouttes de laitier liquide. Notons que leur taille peut varier de quelques dixièmes à quelques centaines de micromètres. Les plus fines particules sont toujours représentées, tandis que les plus grosses n'apparaissent que de façon occasionnelle. D'après Huber (2000), l'existence de ces deux catégories de gouttes suggère deux types de mécanismes distincts : le premier, à l'origine des grosses projections, est fonction de la conduite du four et plus probablement de la variation des paramètres d'injection d'oxygène (angle et position de la lance, vitesse du gaz) ; le second est inhérent au procédé et est attribué aux projections par éclatement de bulles.

Les particules de *type c* sont des sphères composites, constituées d'une phase vitreuse (Fe, Si, Ca) et de grains cristallins de type spinelle (Fe, Zn, Mn)  $\text{Fe}_2\text{O}_4$  (voir figure 2.9). Pour Huber (2000), cette morphologie rappelle celle des matériaux obtenus à partir de poudres frittées en présence d'une phase liquide. Elles seraient a priori issues de l'agglomération, au sein des fumées, de particules issues de l'acier liquide et de particules provenant du laitier. Cette dernière phase, à plus bas point de fusion, fait office de liant.



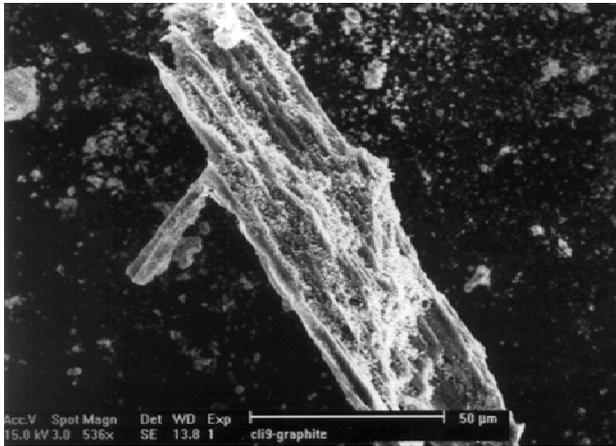
**Figure 2.9 :** Particule composite (grains spinelle dans une phase vitreuse) présentant des porosités internes et débouchantes, vue en coupe [Huber (2000)]

Les particules de *type d* sont composées exclusivement d'éléments volatils éventuellement oxydés (ZnO essentiellement) et se présentent sous deux aspects : des sphères d'une taille maximale de 20 µm mais le plus souvent submicronique, et des monocristaux présentant des facettes et dont la taille dépasse rarement 1 µm (voir figure 2.10). D'après Porter et al. (1982) et Hagni (1995), ces particules se forment par condensation de vapeurs.

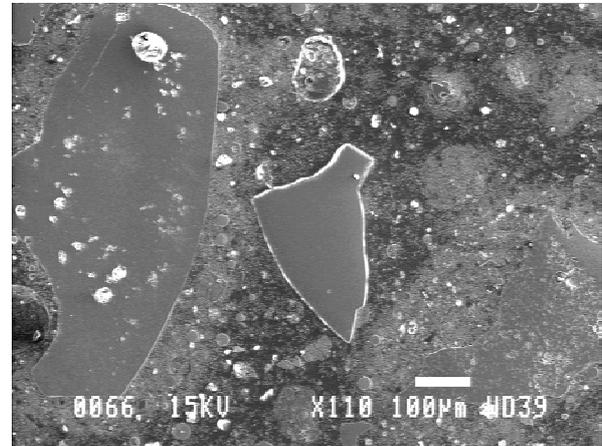


**Figure 2.10 :** Monocristaux de zincite [Hagni (1995)]

Enfin, les particules de *type e*, de forme irrégulière et de compositions diverses (voir figures 2.11 et 2.12), correspondent aux matériaux solides pulvérulents introduits dans la charge (coke, chaux...). Elles ne constituent habituellement qu'une part très faible des poussières et leur présence est liée aux conditions d'addition (injection en surface, dans le laitier, dans le métal) et à la granulométrie du produit injecté.



**Figure 2.11 :** Particule de charbon, vue externe [Huber (2000)]

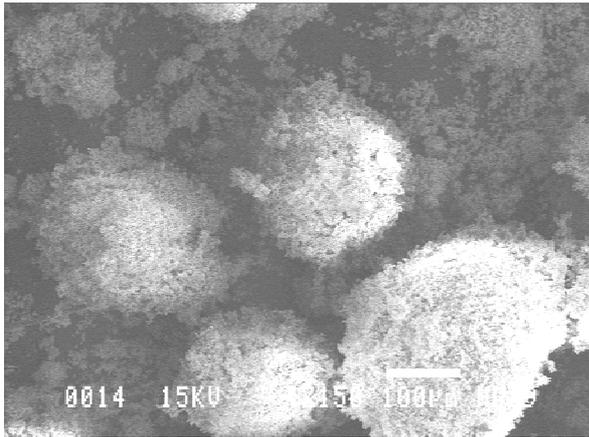


**Figure 2.12 :** Particules de chaux, vue en coupe [Huber (2000)]

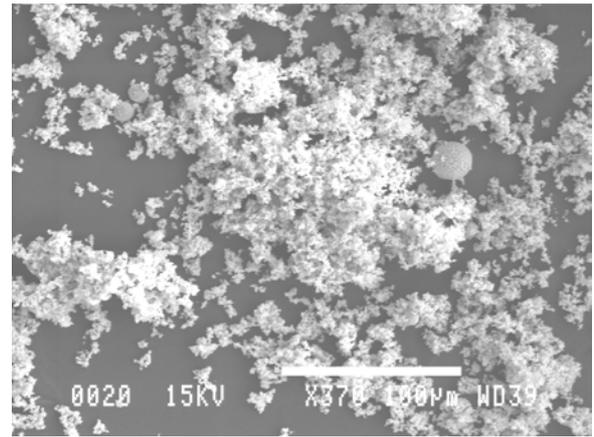
Outre la classification par type morpho-minéralogique, Huber (2000) propose également de distinguer les grosses particules des fines particules, en retenant une taille « charnière » de l'ordre de 20  $\mu\text{m}$ . Les grosses particules, d'une taille allant de quelques dizaines à quelques centaines de micromètres, sont présentes en très faible quantité voire complètement absentes d'un grand nombre de lots de poussières. Il s'agit généralement de particules de chaux et de charbon (*type e*) et de grosses gouttelettes de laitier (*type b*). Leur présence est souvent révélatrice d'un débit d'aspiration excessif ou d'une conduite anormale du procédé de fusion.

### *Structure des agglomérats de particules discrètes*

Comme le révèlent les figures 2.4 et 2.13, les particules discrètes sont rarement présentes de façon isolée mais plutôt sous forme agglomérée. Ces amas de particules discrètes ont une taille qui varie de quelques micromètres à plus de 1 mm et sont souvent très fragiles. Ainsi, ils ont tendance à se désagglomérer lorsqu'ils sont soumis à un faisceau électronique ou au criblage (figure 2.14).



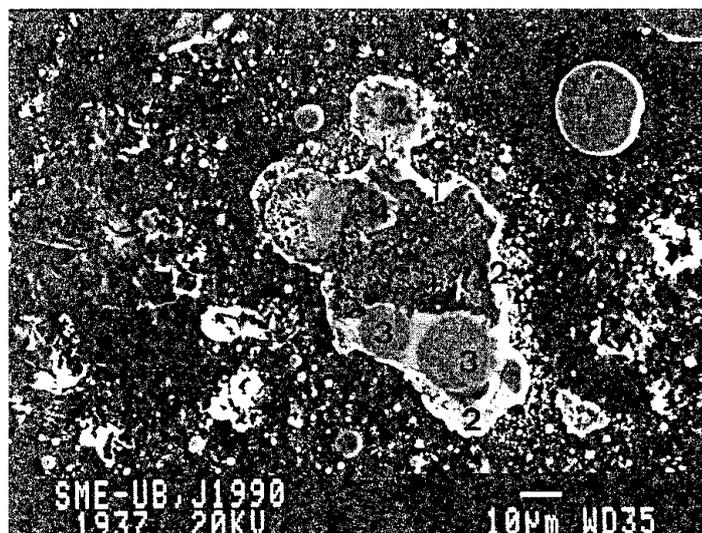
**Figure 2.13 :** Amas de particules  
[Huber (2000)]



**Figure 2.14 :** Morphologie après criblage  
[Huber (2000)]

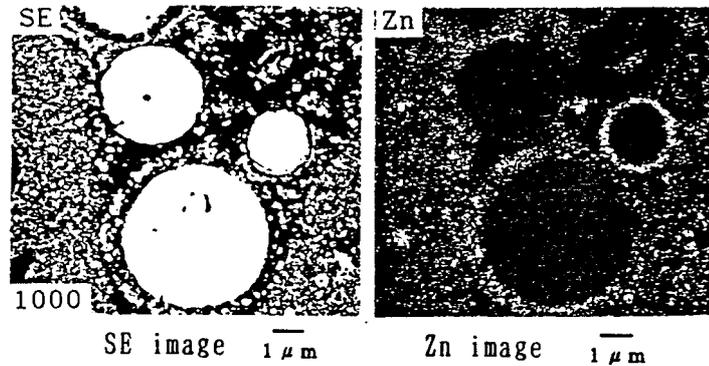
Ce phénomène indique que les forces d'interaction interparticulaires qui assurent la cohésion de l'agglomérat sont assez faibles. Il s'agit vraisemblablement de forces de type Van der Waals, électrostatique ou magnétique, qui n'engendrent pas de liaisons fortes entre les particules discrètes. Celles-ci se sont probablement agglomérées à froid, en fin de circuit de captage, sur les filtres à manches ou pendant le stockage des poussières.

Outre ces amas de particules discrètes, on relève également la présence de petits agglomérats présentant des signes de coalescence plus ou moins poussée [Cruells et al. (1993), Huber (2000)], indiquant un frittage partiel et donc une agglomération à chaud (voir figure 2.15). Contrairement aux agglomérats précédents, ceux-ci se sont formés au sein même de l'enceinte du four ou au début des conduites du circuit de captage des fumées.

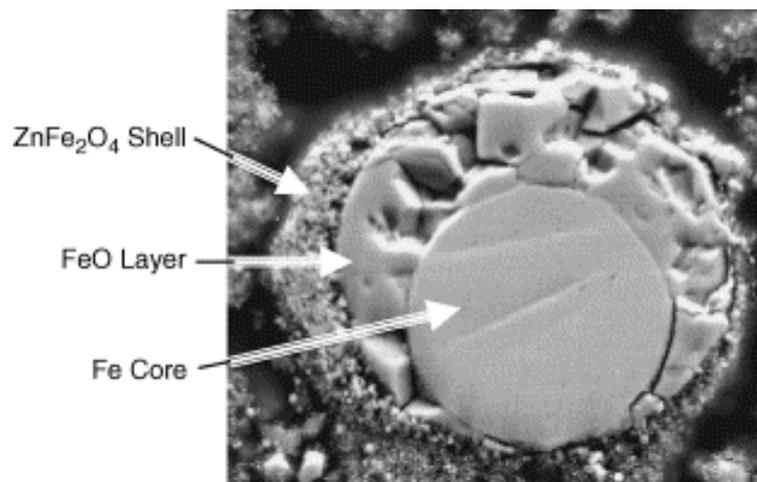


**Figure 2.15 :** Agglomérat de fines particules présentant des signes de frittage partiel  
[Cruells et al. (1993)]

Enfin, de nombreux auteurs [Porter et al. (1982), Hagni (1995), Huber (2000)] ont également observé la formation de couronnes autour de certaines particules discrètes (voir figure 2.7). Ces couronnes présentent un enrichissement en volatils plus important que celui de la particule de cœur. Ce phénomène a également été mis en évidence par Takashima (1995), Nedar (1996) et Kelebek et al. (2004) sur des poussières de convertisseur (voir figure 2.16 et 2.17).



**Figure 2.16 :** Couronne autour de particules de poussières de convertisseur, images obtenues à la microsonde de Castaing [Takashima (1995)]



**Figure 2.17 :** Micrographie d'une particule formée au convertisseur, vue en coupe [Kelebek et al. (2004)]

Plusieurs théories s'affrontent pour expliquer la formation de ces couronnes mais l'hypothèse la plus vraisemblable semble être celle d'une agglomération de fines autour de grosses particules.

### II.1.3. Conclusion

La caractérisation morphologique confirme la diversité des phases d'origine des particules, déjà mise en évidence par l'analyse chimique et minéralogique des poussières de four électrique à arc. Elle révèle l'hétérogénéité des types morphologiques (particules sphériques, facettées ou présentant des formes irrégulières) associée à une grande dispersion des tailles de particules (de quelques centaines de nm à plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$ ). Cette caractérisation couplée à une analyse des phases présentes dans les différents types de particules fournit des indices essentiels sur les phénomènes impliqués dans la formation des poussières : projection de gouttelettes, condensation de vapeurs, envol direct de particules solides, agglomération, coalescence... Comme nous allons le montrer dans la partie suivante, de nombreuses études ont été menées afin de mieux comprendre ces mécanismes et de quantifier leur importance relative dans la formation des poussières.

## II. 2. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE DES MECANISMES DE FORMATION

### II.2.1. Identification des mécanismes de formation

#### *Evolution des théories*

Les mécanismes de formation des poussières proposés précédemment et déduits de leur caractérisation physico-chimique n'ont pas toujours été ceux mentionnés par la littérature. Une revue bibliographique établie par Huber (2000) montre que la formation des poussières sidérurgiques a tout d'abord été attribuée de façon unanime à la seule vaporisation de la charge. Mentionné pour la première fois par Bates (1963) dans une analyse critique des différentes théories, le lien entre formation de poussière et éclatement de bulles de gaz a été mis en évidence par Morris et al. (1966). Par la suite, les projections issues de l'éclatement des bulles seront caractérisées par Ellis et Glover (1971) puis par Polyakov et al. (1974) et Krasheninnikov et al. (1979). Ellis et Glover (1971) ont également mis en évidence un autre mécanisme d'émission appelé « droplet burst » : l'explosion des plus grosses projections en fines particules. Cependant, il faut attendre le début des années quatre-vingt avec la généralisation des outils de microscopie électronique pour que le mécanisme de projection par éclatement de bulles soit considéré comme prépondérant.

Par la suite, plusieurs études utilisant la technique des traceurs [Delhaes et al. (1993), Nedar (1996), Thornton et al. (1996), Birat et al. (1998)] confirment la prédominance des projections par rapport à la volatilisation. L'analyse par traçage consiste à quantifier les poussières en fonction de leur source (liquide, vapeur) grâce à l'analyse d'éléments particuliers (les traceurs) dont on suppose connue la provenance. Ainsi le zinc, le plomb, le cadmium ou le manganèse dont les pressions de vapeur saturante sont très élevées peuvent être considérés comme des traceurs des vapeurs. Les traceurs des phases liquides sont généralement le nickel et le molybdène pour le bain métallique, le titane, l'aluminium et le magnésium pour le laitier. La figure 2.18 montre les résultats obtenus par Nedar (1996) sur

trois fusions (Heat I, II, III), dans le cas du convertisseur. L'auteur a distingué les sept premières minutes correspondant à la période de soufflage (notée : 1 sur la figure 2.18) des 6 à 10 minutes restantes (notées : 2). La figure rappelle également les résultats obtenus par Delhaes et al. (1993) dans le cas de l'AOD (convertisseur pour acier inoxydable). Dans chacun des cas évoqués, on remarque l'importance des projections liquides par rapport aux produits de la volatilisation. Par ailleurs, les projections de métal sont prédominantes, environ 60 %, par rapport aux projections de laitier qui ne représentent que 3 à 14 % des émissions de poussières.

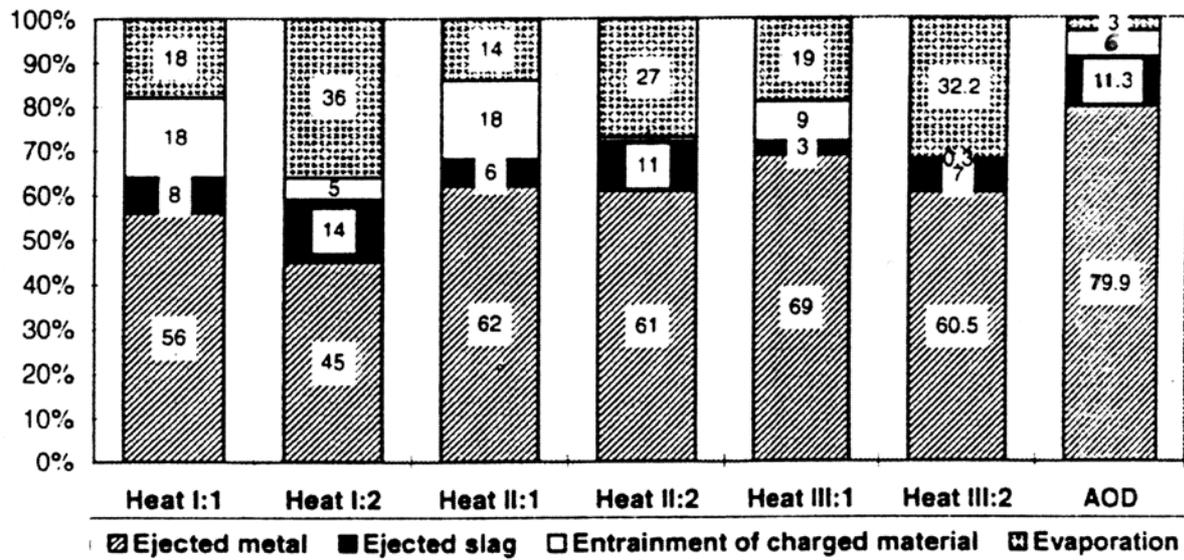


Figure 2.18 : Importance relative des quatre mécanismes d'émission de poussières au convertisseur [Nedar (1996)]

Enfin, grâce à une synthèse minutieuse de la littérature et à l'analyse du procédé, Huber (2000) propose une description complète du phénomène de formation des poussières dans le cas particulier du four électrique à arc. Si les projections dues à l'éclatement des bulles de CO à la surface du bain y tiennent une large place, l'auteur détaille également d'autres mécanismes peu mentionnés dans la littérature mais qui jouent néanmoins un rôle important dans la problématique des poussières au four électrique à arc. Il propose notamment de séparer la formation des poussières en deux étapes :

- l'émission de précurseurs de poussières qui correspondent à la formation, dans l'enceinte du four, de vapeurs, gouttes liquides et particules solides ;
- la transformation de ces précurseurs en poussières au cours du captage.

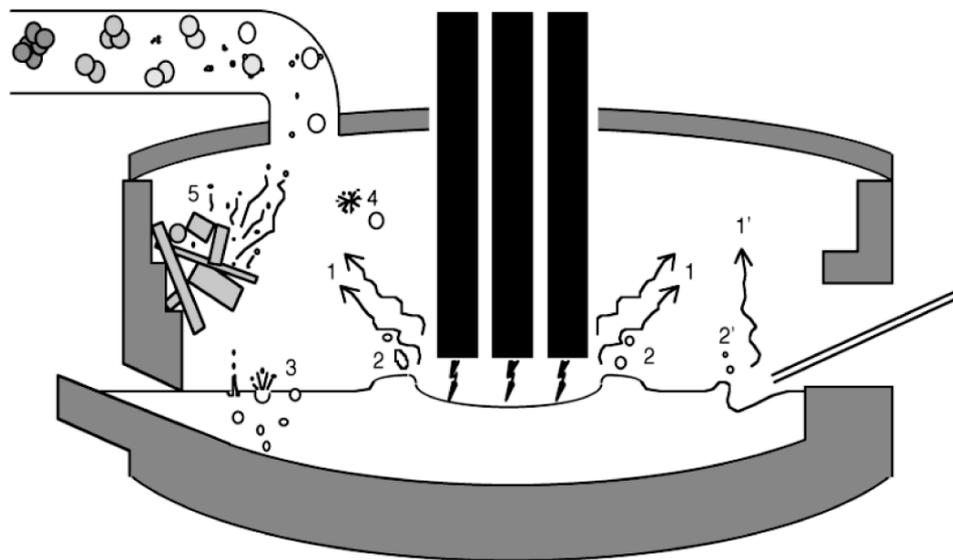
C'est ce formalisme que nous allons développer dans les prochains paragraphes et que nous adopterons dans la suite de l'étude.

### *Les mécanismes d'émission de précurseurs de poussières*

L'observation des différents types morphologiques présents dans les poussières de four électrique et les résultats des études de quantification des mécanismes permettent de

distinguer cinq sources d'émission de précurseurs de poussières. Ces mécanismes, schématisés sur la figure 2.19, sont les suivants :

- La volatilisation, en particulier au niveau des points chauds comme à l'impact de l'arc (mécanisme 1 sur la figure 2.19) ou du jet d'oxygène (mécanisme 1' sur la figure 2.19). L'effet de lavage par les bulles de CO provenant de la décarburation représente une autre contribution majeure à la volatilisation.
- Les projections provoquées par l'impact de l'arc (mécanisme 2 sur la figure 2.19) ou du jet d'oxygène (mécanisme 2' sur la figure 2.19) sur le bain liquide.
- Les projections fines provoquées par l'éclatement des bulles de CO issues de la décarburation (mécanisme 3 sur la figure 2.19).
- L'explosion des gouttelettes dans l'enceinte du four au contact d'une atmosphère oxydante (mécanisme 4 sur la figure 2.19). Ce phénomène est dû à une décarburation intensive ou volatilisation à cœur suite à une oxydation fortement exothermique de la peau.
- L'envol direct de particules solides (mécanisme 5 sur la figure 2.19) lors de l'introduction de matériaux pulvérulents dans le four (ferrailles en batch ou en continu, charbon de moussage du laitier, additions, injections de poussières lors de leur recyclage).

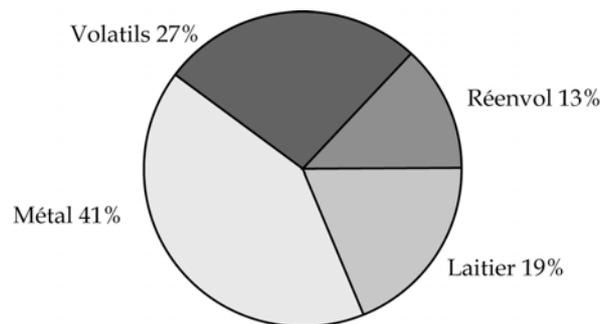


**Figure 2.19 :** Représentation schématique des différents mécanismes d'émission dans l'enceinte d'un four électrique [Huber (2000)]

L'importance relative des différents types d'émission a été en partie quantifiée par Birat et al. (1998), grâce à une campagne de mesures menée à l'IRSID sur un four électrique

pilote d'une capacité de 6 tonnes. Les auteurs utilisent la technique des traceurs associée à un prélèvement semi-continu des poussières (prélèvement isocinétique dans la gaine du circuit de captage), comme l'avaient fait précédemment Delhaes et al. (1993) pour caractériser les poussières d'AOD et Nedar (1996) dans le cas du convertisseur.

Les traceurs employés par Birat et al. (1998) sont le molybdène, le nickel et le cuivre pour le métal liquide, le calcium, le silicium et le titane pour le laitier, le zinc, le plomb, le bismuth et le cadmium pour la volatilisation. La figure 2.20 présente après calibrations et corrections, la répartition des différents types de précurseurs (laitier, métal, volatils, particules solides) dans les poussières.



**Figure 2.20 :** Parts relatives des projections de métal et de laitier, de la volatilisation et de l'envol direct [Birat et al. (1998)]

Les résultats de cette étude doivent être considérés comme un bon indicateur de la part de chacun des mécanismes dans la formation des poussières au four électrique à arc : un indicateur précis dans le cas d'essais typiques au four pilote de l'IRSID mais seulement qualitatif pour les autres cas. Ainsi, les auteurs font remarquer que l'envol direct, provenant des additions ou de la charge de ferrailles, est limité si des précautions opératoires suffisantes sont prises. Par ailleurs, la teneur en volatils peut varier d'une charge à l'autre, entraînant une modification de la quantité de poussières issues de la volatilisation (sachant, et c'est un point essentiel, que la totalité des espèces volatiles présentes dans la charge est retrouvée dans les poussières). Une fois ces réserves énoncées, on remarque néanmoins que les projections de métal liquide et de laitier constituent la contribution majeure à la formation des poussières.

### *La transformation des précurseurs en poussières*

Après leur émission, les précurseurs de poussières subissent diverses transformations, physiques et chimiques, dans l'enceinte du four puis dans les conduites de captage du système de dépoussiérage. Les transformations d'ordre physique qui affectent les précurseurs de poussières ont été peu étudiées en-dehors du travail d'Huber (2000). Elles se déduisent essentiellement de la caractérisation des poussières et de la connaissance du procédé de fusion au four électrique. Ces mécanismes de transformation sont de deux natures :

- Le passage de l'état gazeux ou liquide à l'état solide : les gouttelettes projetées se solidifient au contact d'une atmosphère plus froide ; les vapeurs constituées essentiellement d'éléments volatils présents dans la charge (zinc, plomb, cadmium, manganèse, fer) se condensent pour former de très fines particules.
- L'agglomération : sous l'influence de l'agitation brownienne et/ou de la turbulence de l'écoulement, les précurseurs de poussières peuvent entrer en collision et s'agglomérer pour former des particules plus grosses ; lorsque la température est suffisamment élevée, les agglomérats subissent également des phénomènes de frittage, voire de coalescence. Ce sont ces phénomènes qui président, entre autres, à la formation des poussières composites que l'on rencontre dans les échantillons issus de four électrique : particules constituées de métal et d'une matrice vitreuse, agglomérat de fines autour d'une grosse particule...

En ce qui concerne les transformations de nature chimique que peuvent subir les précurseurs de poussières, on peut distinguer deux types de réactions mises en évidence par la littérature :

- Réactions entre précurseurs : pour les phases solides et liquides, ceci suppose une mise en contact préalable ; ces réactions sont donc étroitement liées aux mécanismes d'agglomération.
- Réactions des précurseurs avec le gaz porteur : il s'agit essentiellement de réactions d'oxydation, liées à l'évolution de la composition chimique et de la température de l'atmosphère gazeuse dans l'enceinte du four puis dans les conduites de captage, et de réactions entre les vapeurs métalliques (zinc par ex.) et les précurseurs solides ou liquides.

Ce sont l'ensemble de ces réactions chimiques qui déterminent la part des principales phases détectées dans les poussières (oxydes de fer, oxydes de type spinelle, zincite) et donc les possibilités de valorisation ultérieure. Nous avons vu par exemple que par hydrométallurgie seul le zinc sous forme de zincite pouvait être récupéré et valorisé lors d'un traitement des poussières.

## **II.2.2. L'émission de précurseurs de poussières**

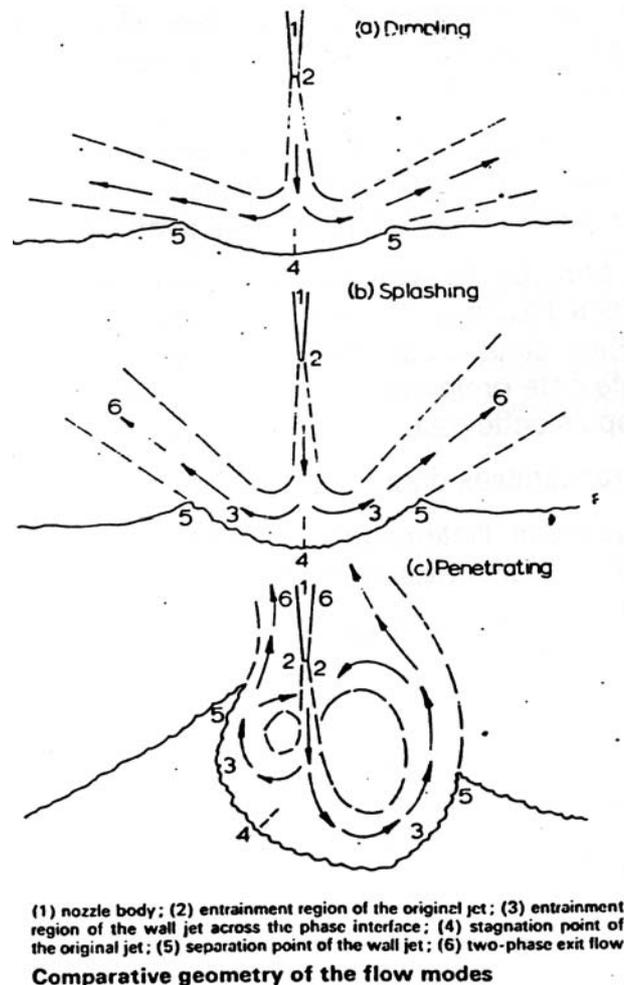
### *Les projections à l'impact du jet d'oxygène*

De nombreuses études ont été menées sur les projections générées par l'impact d'un jet de gaz à la surface du métal liquide. Ce phénomène représente en effet un moyen d'action efficace dont disposent les sidérurgistes pour accroître les échanges entre métal et laitier en créant une dispersion de gouttes métalliques au sein du laitier. La majorité des études menées sur ce sujet concernent le soufflage au convertisseur. Néanmoins, les résultats

obtenus peuvent être appliqués au four électrique à arc, les mécanismes étant similaires d'un réacteur à l'autre.

### Mécanismes d'émission

Le phénomène de projection de métal par un jet impactant est directement lié à la morphologie de la cavité générée par le jet, que l'on appelle aussi zone d'interaction ou zone de réaction dans le cas d'un jet gazeux réactif (oxygène). La forme de la surface d'impact dépend des conditions de soufflage, à savoir du débit de gaz, de la distance entre l'extrémité de la lance et la surface du bain (appelée hauteur de lance), du diamètre et de l'orientation des tuyères. Différentes configurations de la cavité (voir figure 2.21) ont été mises en évidence grâce aux études menées sur maquettes froides par Standish et He (1989) et He et Standish (1990) ou sur convertisseur pilote par Chernyatevitch et al. (1980).



**Figure 2.21 :** Configuration des cavités créées par l'impact du jet à la surface d'un liquide [Chernyatevitch et al. (1980)]

A très faible débit de gaz ou à très grande hauteur de lance, la cavité formée n'est pas assez profonde pour que le jet réfléchi puisse arracher les bords de la cavité et créer des

projections (figure 2.21.a). Lorsque le débit augmente, la cavité se creuse et le jet réfléchi entraîne les bords supérieurs du cratère sous forme de petites gouttes isolées. C'est le phénomène dit de « dropping » ou « splashing jet » (figure 2.21.b). A plus fort débit, le jet est dit pénétrant et l'on passe d'un mécanisme d'entraînement de gouttes à un phénomène d'atomisation (figure 2.21.c). La cavité se creuse et commence à se refermer tandis que les bords du cratère deviennent instables. Il se forme alors à ses extrémités des « doigts de métal » qui sont arrachés par le jet. Ces gros volumes de métal éjectés du bain peuvent traverser de nouveau le jet et éclater en formant un nuage de petites gouttes qui sont en partie réentraînées dans le bain. Ce phénomène d'atomisation, appelé « swarming », génère un débit de métal projeté plus important que dans le cas d'un phénomène de « dropping ». On observe également une augmentation de la taille moyenne des projections et une augmentation de la hauteur de projection.

### Débit de projection – Taille des projections

Plusieurs études, sur maquette froide ou chaude, ou sur des installations industrielles, ont été menées afin d'évaluer la taille des projections et le débit de métal projeté. Les dispositifs de mesure utilisés sont nombreux : cinématographie rapide [Loske et Lange (1985), Peaslee et Robertson (1994), Jong-Leng et Gray (1996)], mesure potentiométrique [Tanaka et Okane (1987)], mesure par pesée [He et Standish (1990), Koria et Lange (1984)], recueil sur plaque [Koria et Lange (1978, 1986)], analyse des dépôts sur les divers éléments des installations industrielles [Okhotskii et al. (1972, 1977)]. La distribution de taille des gouttes est accessible par l'ensemble des techniques présentées mais aucune d'entre elles ne permet de mesurer le débit instantané de projections, seul un débit moyenné sur une partie ou la totalité de la période de soufflage peut être calculé.

Les projections qui ont pu être observées aussi bien sur maquette froide que chaude, ont un diamètre équivalent en volume compris entre 200 µm et 5 mm. Sur installation industrielle (convertisseur), sans laitier, la distribution des projections observées est plus large : entre 50 µm et 70 mm [Koria et Lange (1978, 1984, 1986)]. Les hauteurs atteintes par les projections varient de moins de 10 cm à plus de un mètre en fonction du débit de gaz et du type d'injection (injection par le haut, seule ou combinée à une injection par le fond ou le côté) [Meshalkin et al. (1985)].

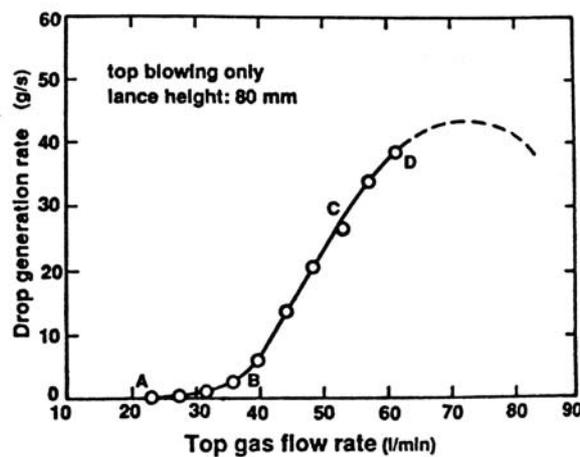
Koria et Lange (1978, 1984, 1986) ont montré que la distribution de taille de gouttes projetées lors d'un soufflage vertical obéissait à une loi de type Rosin-Rammler-Sperling qui exprime le pourcentage massique cumulé  $R$  des projections de diamètre supérieure à  $d$  comme :

$$R = 100 \exp \left[ - \left( \frac{d}{d'} \right)^n \right] \quad (2.1)$$

Le paramètre  $d'$  est une fonction du débit de soufflage, de l'angle et du diamètre des tuyères... En revanche,  $n$  est un paramètre indépendant des conditions de soufflage dont la valeur moyenne est de 1,26 pour la fonte et l'acier liquide. Cette loi de distribution de taille a

été confirmée par Peaslee et al. (1993) à partir d'essais sur maquette froide. Elle montre que 95 % des projections ont une taille supérieure à 1 mm.

Par ailleurs, si l'on observe en général une augmentation du débit de matière projetée lorsque la hauteur de lance diminue ou lorsque le débit d'injection augmente (voir figure 2.22), Standish et He (1989) ont montré que la quantité de projections passe par un maximum et diminue au-delà d'un certain débit. L'existence de ce maximum de projections a également été mis en évidence en diminuant la hauteur de lance. Ce phénomène s'explique probablement par l'évolution de la forme de la cavité : à très fort débit ou à faible hauteur de lance, la cavité se referme sur elle-même et une grande partie des projections est à nouveau entraînée dans le bain.



**Figure 2.22** : Influence du débit d'injection du gaz sur le débit de projection [Standish et He (1989)]

L'inclinaison du jet influence également la taille des projections : lorsque le jet est vertical, les gouttes émises sont plus petites que dans le cas d'un jet incliné, notamment en régime de swarming [Peaslee (1996)]. En effet, les « doigts de métal » projetés ont une trajectoire qui les éloignent du jet lorsque celui-ci est incliné, ils ont donc moins de chance d'être fractionnés en petites gouttes. En revanche, l'inclinaison du jet ne semble pas avoir d'influence sur la quantité de métal projeté.

### Influence du laitier

La présence de laitier modifie sensiblement la génération des projections. Lorsqu'on a un jet de type « splashing », le métal n'est pas découvert. Il se produit alors un phénomène de dropping, similaire à celui décrit précédemment, qui entraîne la projection dans l'atmosphère de gouttes de laitier. On observe également le bouleversement de l'interface métal-laitier qui conduit à l'entraînement de nombreuses gouttes de métal dans le laitier et donc à la formation d'une émulsion laitier-métal. Lorsqu'on augmente le débit d'injection, le jet repousse le laitier et découvre le métal ; on observe alors la formation de projections par un phénomène de type « swarming ». He et Standish (1990) ont montré que la présence de

laitier entraîne une augmentation de la valeur du débit de transition entre le phénomène de dropping et de swarming. Aucune influence directe du laitier sur la taille des particules ou la quantité de projections n'a pu être démontrée.

### Cas de l'arc électrique

Contrairement au cas du jet d'oxygène, la projection de gouttes liquides générées par l'impact de l'arc électrique est un phénomène mal connu. A notre connaissance, la seule étude disponible à ce sujet a été menée par Huber (2000) grâce à des essais de visualisation du comportement du bain métallique dans la zone d'arc d'un four à arc expérimental du centre de recherche d'EDF (Les Renardières). Les résultats obtenus montrent la formation d'une cavité similaire à celle obtenue lors de l'impact d'un jet gazeux de type « splashing » (voir figure 2.21). Sous l'effet de l'écoulement des espèces gazeuses provenant de l'arc, le métal liquide est entraîné en surface de façon centrifuge. Ce déplacement s'accompagne de la formation de vaguelettes de la crête desquelles se détachent des gouttes liquides. La taille de ces projections est comprise entre 100 µm et 1 mm, et la plupart d'entre elles retombe dans le bain.

### Conclusions

Au vu des différents résultats présentés dans la littérature, il apparaît que la taille des projections générées par l'impact du jet d'oxygène ou de l'arc électrique est comprise entre 40 µm et plusieurs cm. Sachant que la majeure partie des particules que l'on retrouve dans les poussières de four électrique à arc ont une taille inférieure à 20 µm, la contribution de ce phénomène à la formation des poussières est relativement limitée. Seules les plus fines projections y participent, sous réserve que leur trajectoire puisse les amener au niveau du quatrième trou (extraction des fumées) où les vitesses de gaz sont élevées et susceptibles de les entraîner.

### *La volatilisation*

La volatilisation au four électrique à arc concerne essentiellement des éléments tels que le zinc, le cadmium, le plomb ou le mercure, dont la pression de vapeur saturante est élevée à la température de l'acier liquide, et dans une moindre mesure le fer, dont la pression de vapeur saturante est beaucoup plus faible. Les études expérimentales utilisant la technique des traceurs ont montré que la totalité des éléments volatils présents dans la charge se retrouvait dans les poussières. Le zinc est l'élément le plus représenté (voir § II.1.1), en raison de la généralisation, aussi bien dans la construction automobile que dans le BTP, de l'emploi de produits zingués qui se retrouvent in fine dans les ferrailles. La volatilisation peut également concerner d'autres éléments tels que l'étain ou le molybdène, qui, lorsqu'ils sont présents sous forme de sulfures ou d'oxydes, présentent une pression de vapeur saturante plus élevée.

Au cours des différentes étapes du procédé, les mécanismes de volatilisation ne sont pas toujours les mêmes. Au début de la fusion, la volatilisation concerne surtout les éléments présents à la surface des ferrailles tel que le zinc. Au cours de la phase de décarburation et d'affinage, la volatilisation affecte les éléments dissous dans le bain dont la pression de vapeur saturante est élevée à la température de l'acier liquide ; elle est localisée dans les zones non recouvertes par le laitier, à savoir les zones d'impact de l'arc et du jet d'oxygène ainsi que la surface des bulles de CO à l'intérieur du bain métallique.

### Volatilisation au cours de la phase de fusion

La volatilisation du zinc recouvrant des tôles galvanisées a été étudiée par Ozturk et Fruehan (1996). Ceux-ci ont utilisé l'analyse thermogravimétrique afin de déterminer expérimentalement la cinétique de volatilisation du zinc. Sous atmosphère neutre (azote) ou réductrice (monoxyde de carbone), la majeure partie du zinc est volatilisée dès que la température dépasse 850°C. Au-delà de 950°C, la cinétique de volatilisation est extrêmement rapide et ne peut être mesurée de façon précise. En présence d'une atmosphère oxydante (dioxyde de carbone), une compétition s'installe entre la volatilisation et l'oxydation du zinc sous forme d'une couche de ZnO qui constitue une barrière à la volatilisation. Les mêmes auteurs ont également réalisé des essais expérimentaux afin de simuler le processus de chauffage des ferrailles au four électrique à arc (atmosphère composée d'air et de CO<sub>2</sub>, température variant de 600 à 1100 °C) : la majorité du zinc se volatilise (plus de 90 %). A l'échelle industrielle, il est difficile de déterminer la cinétique de volatilisation, notamment en raison des différences de température entre le haut et le bas de la charge. Cependant, il est probable qu'une grande partie du zinc présent à la surface des ferrailles se volatilise au cours de la période de fusion.

Huber (2000) mentionne également un phénomène secondaire qui peut se produire en fin de fusion lors de chutes de ferrailles solides dans le bain liquide (affalages) : le contact brutal avec le métal en fusion peut entraîner un dégagement immédiat de vapeur de zinc (avec ébullition) en raison de sursaturations locales. Le même phénomène peut se produire en cas d'injection de poussières riches en zinc à des fins de recyclage. L'effervescence se produit lorsque la pression partielle de vapeur de zinc est supérieure à la pression totale locale au sein du liquide. En utilisant la relation d'équilibre donnée par Plushkell et Janke (1992), l'auteur montre qu'il y a ébullition lorsque la concentration en zinc dépasse localement 0,4%. En présence d'autres éléments volatils et de gaz dissous, cette limite s'abaisse puisque l'ébullition est possible dès lors que la somme des pressions partielles est supérieure à la pression totale locale du métal.

### Volatilisation en phase de décarburation et d'affinage

En période de décarburation et d'affinage, la charge est - théoriquement - entièrement fondue et la volatilisation peut être décrite par un modèle faisant intervenir trois étapes en série [Ward (1963)] :

- le transport de l'élément volatil dissous, par diffusion et convection, jusqu'à l'interface liquide-gaz (surface libre du métal, bulle de gaz) ;
- la volatilisation proprement dite, qui obéit à la loi de Langmuir-Knudsen ;
- l'évacuation de l'élément sous forme vapeur, par diffusion dans la couche limite gazeuse.

Li et al. (1995) ont étudié la volatilisation du zinc dans l'acier liquide (1600°C) dans un four à induction sous des pressions d'argon allant de 0,1 à 50 bar et ont montré que, parmi les étapes précédentes, les étapes limitantes étaient le transfert dans le métal liquide et, éventuellement, dans la phase gazeuse. Ce résultat peut être rapproché de celui obtenu par Hino et al. (1994), qui ont montré qu'en balayant la surface du métal par de l'argon à un débit élevé, la constante cinétique totale était égale à la constante cinétique dans la phase liquide, soit 0,032 cm.s<sup>-1</sup>, valeur très proche de celle obtenue par Li et al. (1995).

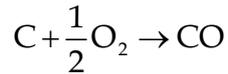
En exploitant des essais menés sur le four électrique pilote EDF des Renardières, Huber (2000) a pu valider cette approche dans le cas de la volatilisation au niveau de la zone d'arc. Il s'agit d'une surface non recouverte par le laitier où la température peut atteindre des valeurs très élevées (2900°C). En extrapolant ces résultats au cas d'un four électrique industriel de 150 tonnes, l'auteur montre que la teneur en zinc dans le bain à la fin de l'affinage représente 99% de la concentration initiale, si l'on ne prend en compte que le phénomène de volatilisation dans la zone d'arc. L'effet de l'arc sur la cinétique de volatilisation en phase de décarburation et d'affinage est donc négligeable, probablement en raison d'une surface de volatilisation réduite.

En revanche, les bulles de CO représentent une surface de transfert beaucoup plus étendue et contribuent certainement de façon significative à la volatilisation. Huber (2000) propose un modèle cinétique de volatilisation basé sur les mécanismes de lavage, prenant en compte la décarburation, le transport des espèces dissoutes vers l'interface et la volatilisation proprement dite. Malheureusement l'absence de données expérimentales concernant par exemple, la taille des bulles, l'évolution de la teneur en carbone et en oxygène dissous dans le bain, ne lui ont pas permis d'exploiter ce modèle.

A partir des résultats présentés dans la littérature, on peut donc dégager deux mécanismes principaux de volatilisation au four électrique à arc : la volatilisation du zinc présent à la surface des ferrailles au cours de l'étape de fusion et la volatilisation des espèces dissoutes dans le bain, notamment par effet de lavage des bulles de CO, pendant la phase d'affinage et de décarburation. Si le premier phénomène est assez bien décrit dans la littérature, le second a encore été peu étudié faute d'une connaissance suffisante des paramètres physico-chimiques impliqués dans ce processus. Les essais expérimentaux menés en laboratoire ou sur four pilote révèlent néanmoins l'importance de l'aire de l'interface liquide-gaz dans ce type de volatilisation. Ainsi, les points chauds tels que la zone d'impact de l'arc électrique ou du jet d'oxygène, qui pouvaient apparaître comme les plus propices à une volatilisation intense, semblent finalement moins participer au phénomène que les bulles de CO qui présentent une large surface d'échange.

### Les projections par éclatement de bulles de gaz

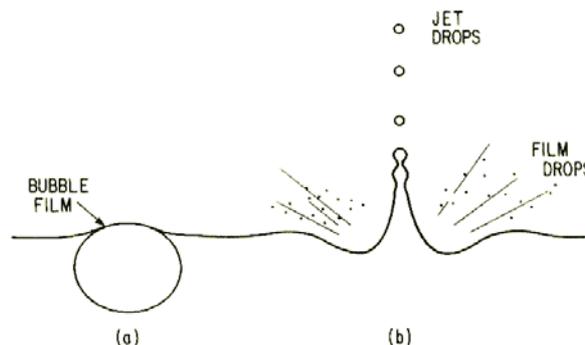
Le procédé d'élaboration au four électrique à arc est le siège de nombreuses réactions dont la décarburation fait partie. Cette réaction produit des bulles de CO qui, lorsqu'elles éclatent à la surface du bain liquide projettent des gouttelettes pouvant contribuer à la formation des poussières. La décarburation tout comme les projections par éclatement de bulles de gaz à la surface d'un métal liquide sont des phénomènes mal connus sur lesquels il existe très peu de données bibliographiques. La formation des bulles de CO est liée à la réaction de l'oxygène injecté dans le bain avec le carbone de l'acier liquide :



Elle implique deux étapes : la germination des bulles et leur croissance. Les bulles peuvent germer sur les parois du four, sur des germes (inclusions, gouttes de laitier) situés à différentes profondeurs dans le bain d'acier, à l'interface métal/laitier ou dans le laitier. Leur croissance dépend des conditions locales et notamment de l'activité locale en oxygène dissous. Bien qu'il n'existe aujourd'hui aucun modèle permettant de décrire précisément la distribution de taille des bulles de CO et de décrire son évolution au cours des différentes phases de fonctionnement du four, il est possible d'obtenir de façon indirecte un ordre de grandeur de la gamme de taille. Ainsi, on considère généralement que des bulles naissant à une profondeur de 0,5 à 1 m et d'un diamètre moyen de 1 à 2 cm décrivent de façon satisfaisante l'ordre de grandeur des cinétiques de brassage [Huber (2000)]. Par ailleurs, des prélèvements de laitier moussant montrent, après solidification, la présence de bulles d'une taille de quelques millimètres. En résumé, la distribution des tailles des bulles de CO qui se forment dans un four électrique couvre probablement un intervalle compris entre 2 et 20 mm.

La formation des gouttelettes dues à l'éclatement de bulles de gaz à la surface d'un liquide a surtout été étudiée dans le cas des systèmes air-eau [Resch et al. (1986), Blanchard et Syzdek (1988), Unger et al. (1996), Spiel (1998)...]. Ces travaux ont mis en évidence l'existence de deux catégories de projections (voir figure 2.23) :

- les gouttes de film qui proviennent de la fragmentation du film formé par la bulle lorsqu'elle parvient à la surface ;
- les gouttes de jet issues de la désintégration du jet liquide après la disparition du film.



**Figure 2.23** : Schéma décrivant l'éclatement d'une bulle à la surface de l'eau [Blanchard et Syzdek (1988)]

Dans le cas du métal liquide, la littérature ne mentionne que trois études ayant mis en œuvre des essais de bullage dans des bains d'acier. Dans la première, Chevrier et Cramb (2000) ont exploité la technique de la fluorescence X couplée à la vidéo haute résolution afin de visualiser le passage d'une bulle à l'interface métal/laitier. Dans son travail de thèse, Huber (2000) a étudié l'éclatement d'une bulle à la surface de l'acier liquide et caractérisé les projections qui en découlent. Enfin, Han et Holappa (2003) se sont intéressés aux deux phénomènes, à savoir passage d'une bulle à l'interface métal/laitier et éclatement de la bulle à la surface du métal liquide. Ces travaux mettent d'une part en évidence l'entraînement de métal liquide dans le laitier lors du passage de la bulle à l'interface entre les deux liquides. Ils confirment d'autre part la formation des deux types de gouttes lors de l'éclatement de la bulle à la surface du métal liquide et montrent l'influence de la taille de la bulle sur les caractéristiques de ces projections. Les gouttes de film sont extrêmement fines – de quelques centaines de nanomètres à une vingtaine de micromètres – alors que le diamètre des gouttes de jet varie de plusieurs centaines de micromètres à quelques millimètres dans la gamme de taille de bulle étudiée (entre 7 et 12 mm). Pour Huber (2000), seule une très faible partie des gouttes de jet est aspirée par le système de captage, le reste retombant dans le bain. Au contraire, la majeure partie des gouttes de film a une taille proche de celles des particules présentes dans les poussières de four électrique. Pour l'auteur, elles représentent donc la principale contribution à la formation des poussières par éclatement de bulles. Nous reviendrons sur l'ensemble de ces résultats au chapitre III, en les détaillant de manière plus précise.

### **II.2.3. La transformation des précurseurs en poussières**

#### *Evolution chimique dans les fumées*

L'analyse chimique des poussières (cf. § II.1.1) a mis en évidence la prédominance de deux éléments : le fer et le zinc. Le fer représente entre 30 et 50 % de la masse de poussière et provient essentiellement des projections de gouttes liquides générées par l'éclatement des bulles ou par l'impact de l'arc électrique et du jet d'oxygène sur le bain. Le zinc, quant à lui, est issu de la volatilisation de la charge : après émission, les vapeurs de zinc se condensent et/ou réagissent avec les autres espèces présentes dans les fumées (gazeuses, liquides ou solides) et se retrouvent dans les poussières sous forme de zincite ( $ZnO$ ), de ferrite de zinc ( $ZnOFe_2O_3$ ) et plus rarement sous forme de zinc métallique. Le zinc représente 10 à 50 % de la masse des poussières et en constitue la part valorisable. La filière de valorisation par des procédés hydrométallurgiques est généralement plus attractive que la filière pyrométallurgique d'un point de vue économique [Huber (2000)]. Cependant, dans ces procédés basés sur la dissolution du zinc, seul le zinc sous forme zincite est extrait car les ferrites de zinc ont une faible solubilité. Le partage du zinc entre la zincite et les oxydes mixtes fer-zinc conditionne donc l'efficacité des procédés hydrométallurgiques et constitue ainsi un paramètre essentiel pour le choix d'une stratégie de valorisation optimale.

Pour déterminer les phases du fer et du zinc thermodynamiquement stables dans les conditions représentatives des fumées d'un four Waelz (outil de production du zinc),

Yazawa et Azakami (1969) ont superposé les diagrammes du fer et du zinc. Pluschkell et Janke (1992) ont procédé de même dans le cas du convertisseur. Remarquant l'insuffisance de ces approches pour prédire l'apparition de la ferrite de zinc, par exemple, Huber (2000) a mis au point une description thermodynamique détaillée du système Fe-Zn-O, tenant compte des phases classiques mais également de l'existence de solutions solides. Il a ensuite complété cette description par les espèces associées au carbone ( $\text{CO}_2$ , CO et C graphite) afin de l'appliquer au cas des fumées de four électrique à arc. La figure 2.24 représente le diagramme de prédominance ainsi obtenu ; la frontière d'apparition de la zincite a été tracée pour des teneurs en zinc dans les poussières de 20 % et de 50 %.

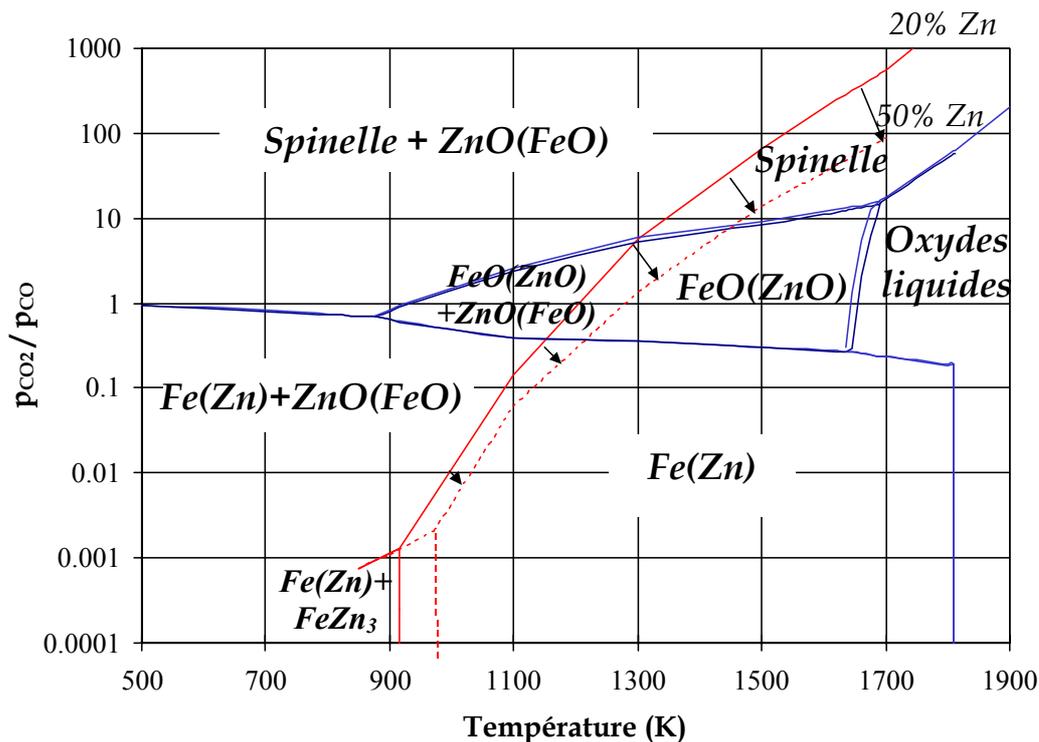
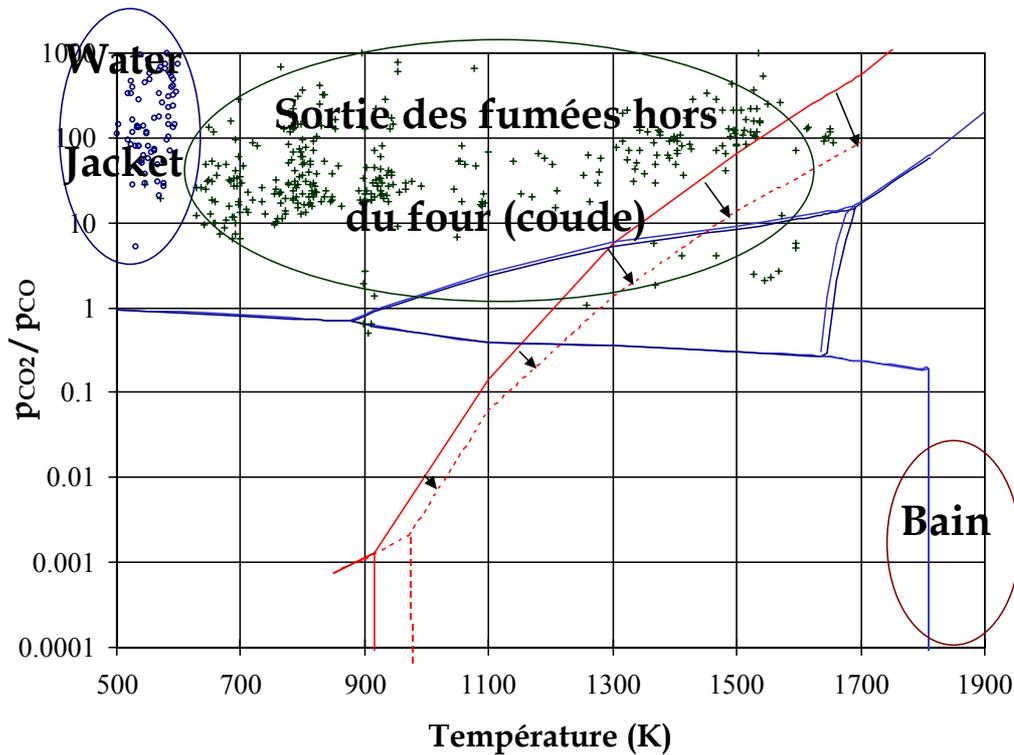


Figure 2.24 : Diagramme de prédominance des phases du système Fe-Zn-O [Huber (2000)]

A partir de données mesurées lors d'un cycle de fusion et d'affinage sur un four pilote, l'auteur a reporté sur le diagramme les points représentatifs des conditions opératoires au four électrique (voir figure 2.25). Les fumées, et donc les poussières qu'elles transportent, suivent un chemin globalement favorable à la formation de la phase spinelle et de la zincite en accord avec l'analyse minéralogique (cf. § II.1.1). Par ailleurs, la thermodynamique ne prévoit pas de condensation des vapeurs de zinc : celles-ci s'oxydent en ZnO ou réagissent avec les phases du fer.



**Figure 2.25 :** Diagramme de prédominance des phases et conditions opératoires mesurées au cours d'un cycle de fusion-affinage [Huber (2000)]

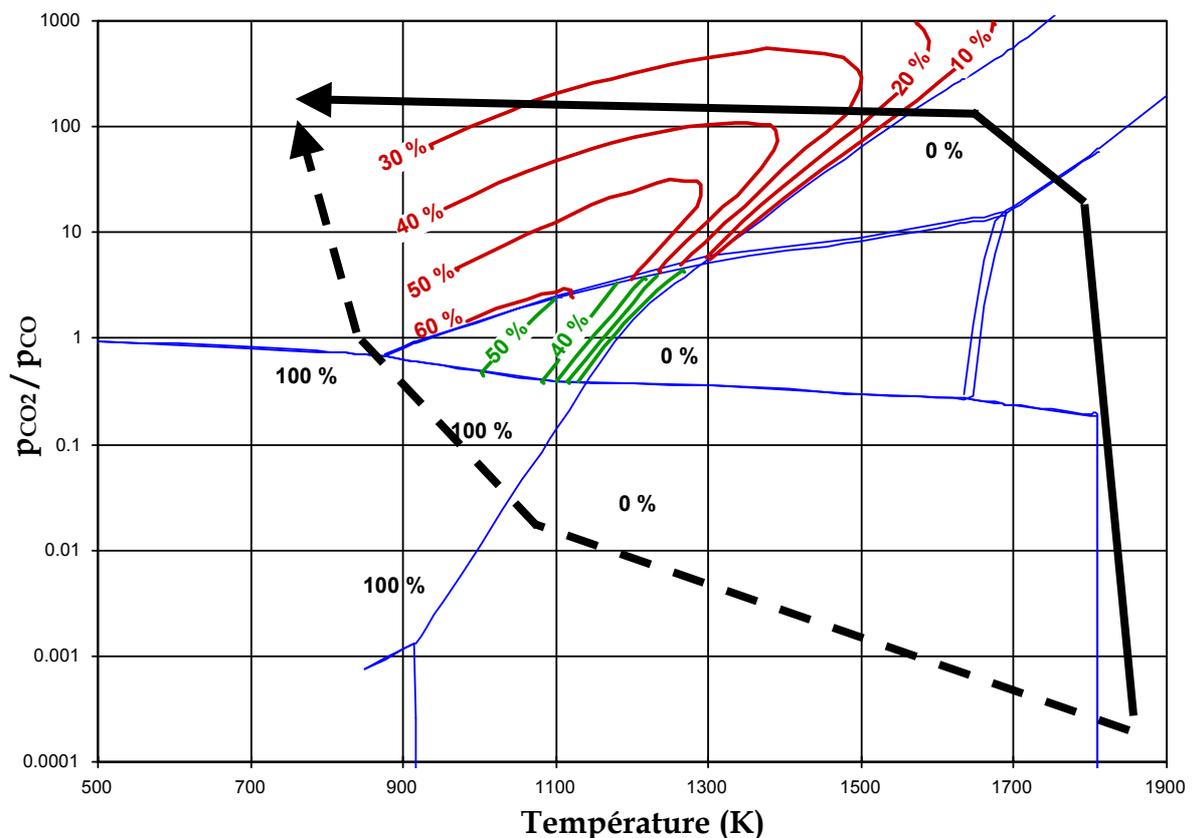
En partant du diagramme de prédominance des phases, Huber (2000) a également cherché à identifier les conditions opératoires favorables à la formation de poussières riches en zincite et donc plus facilement valorisables. Il a ainsi calculé la fraction massique de zinc sous forme zincite par rapport à l'ensemble du zinc contenu dans les phases condensées pour différentes valeurs de température. La figure 2.26 présente les courbes correspondant aux isovaleurs de fraction de zinc sous forme zincite. Lorsque les conditions sont réductrices, l'ensemble du zinc contenu dans les phases condensées se trouve sous forme de zincite. En revanche dans les domaines d'existence de la wüstite et du spinelle, la fraction de zincite est d'autant plus faible que les conditions sont oxydantes.

La figure 2.26 décrit également l'évolution suivie par les fumées dans des conditions de type oxydantes (trait plein) ou réductrices (trait discontinu). Le chemin en trait plein correspond à des entrées d'air importantes ou à l'utilisation de la post-combustion du CO par injection d'oxygène dans l'enceinte du four. Dans ce cas, la formation de la phase spinelle débute avant celle de la zincite, et ce spinelle s'enrichit par réaction avec le zinc gazeux. Par la suite au cours du refroidissement, il ne sera jamais possible de former plus de 35 à 40 % de zinc sous forme zincite.

Lorsque les fumées suivent le chemin en trait discontinu, correspondant à un four étanche, la zincite se forme aux alentours de 1000 K, alors que le fer n'est pas encore oxydé. La solubilité du fer dans le zinc étant négligeable, une quantité importante de zincite est formée. Celle-ci se forme par une réaction de combustion, considérée comme instantanée, ce qui signifie que l'équilibre thermodynamique est très rapidement atteint. L'ensemble du zinc disponible se trouve donc sous forme de particules de zincite lorsque les conditions

deviennent assez oxydantes pour voir apparaître la phase spinelle. Celle-ci ne peut assimiler du zinc en solution que par des réactions solide-solide dont la cinétique est lente. Ainsi la quasi-totalité du zinc se retrouve sous forme zincite et le potentiel de valorisation des poussières par hydrométallurgie est alors maximal.

Pour parvenir à un tel résultat, Huber (2000) préconise de refroidir les fumées en conditions réductrices avant la combustion des imbrûlés. Lorsque la post-combustion, qui est défavorable à la formation de zincite, est utilisée, il propose de l'associer à une stratégie de recyclage par accumulation : stockage des poussières pendant  $n$  fusions avec post-combustion, puis injection de ces poussières lors de la fusion  $n+1$  en conditions réductrices.



**Figure 2.26 :** Proportion de zinc sous forme zincite par rapport au zinc contenu dans l'ensemble des phases condensées ; en trait plein : évolution des fumées en conditions oxydantes ; en trait discontinu : évolution des fumées en conditions réductrices [Huber (2000)]

### *Agglomération des particules dans les fumées*

L'observation morphologique des poussières de four électrique à arc a mis en évidence l'état fortement aggloméré des poussières avec parfois des signes de frittage et de coalescence partielle ou totale entre les différents « grains » constitutifs (cf. § II.1.2). En effet, sous l'influence de l'agitation brownienne et/ou de la turbulence, les particules transportées au sein du fluide gazeux, dans les conduites de captage, peuvent entrer en collision et

s'agglomérer. Lorsque la température est suffisamment élevée, les agglomérats formés subissent également des phénomènes de frittage, par diffusion en phase solide, voire de coalescence, par déformation visqueuse. La dynamique de l'agglomération influence donc l'évolution de la distribution granulométrique et la morphologie des particules, qui jouent un rôle prépondérant dans la valorisation ultérieure des poussières. En effet, de ces paramètres dépendent, par exemple, l'efficacité des filtres chargés de récupérer les poussières, la facilité de manipulation et d'injection, les risques de réenvol des particules les plus fines au cours de ces deux opérations... La mise en place d'une stratégie de recyclage efficace nécessite donc une bonne connaissance de l'évolution des précurseurs de poussières dans l'enceinte du four puis dans le circuit de captage.

De nombreux procédés industriels exploitent l'agglomération des particules en voie gazeuse, notamment pour la production de poudres ultra-fines par voie de flamme (fumée de silice [Kruis et al. (1993)], pigments d'oxyde de titane [Xiong et Pratsinis (1991)]...). Dans ce cadre, des modèles mathématiques ont été développés afin de décrire l'évolution des particules transportées en fonction des conditions opératoires.

En revanche, il n'existe que peu d'études concernant le comportement d'un aérosol au sein d'un circuit de captage, et la plupart d'entre elles visent à décrire le dépôt des particules sur les parois des conduites. Huber (2000) a cependant mis au point un modèle d'agglomération au four électrique à arc, qui permet de calculer l'évolution morphologique des particules de poussière dans l'enceinte du four, puis dans le circuit de captage. Il s'agit d'un modèle de type monodispersé, adapté du formalisme proposé par Kruis et al. (1993). La loi de distribution de taille est simplifiée à l'extrême puisque l'on considère que toutes les particules ont le même volume. Cette simplification permet de prendre en compte de façon détaillée les effets de coalescence et/ou de frittage en évitant des temps de calcul prohibitifs.

Ce modèle a été appliqué au cas du four électrique pilote de 6 tonnes de l'IRSID. La figure 2.27 présente l'évolution relative du nombre de particules en fonction de la distance depuis le bain pour différentes valeurs de concentrations et de tailles initiales de particules. Ainsi pour des concentrations initiales relativement faibles, l'essentiel de l'agglomération se produit dans l'enceinte du four et, plus faiblement au coude. En revanche, dans les parties du circuit de captage situées au-delà de la chambre de combustion, l'agglomération est négligeable. Avec des concentrations locales initiales extrêmement élevées, l'agglomération est forte dans toutes les zones du captage. Par ailleurs, l'agglomération est plus rapide avec des particules de diamètre initial 1  $\mu\text{m}$ , qui subissent à la fois l'agitation brownienne et les mouvements de turbulence, qu'avec celles de 10  $\mu\text{m}$  qui ne subissent que la turbulence.

La figure 2.28 présente l'évolution du nombre moyen de particules discrètes constituant les agglomérats en fonction de la distance du bain. Dans l'enceinte du four et au coude, les agglomérats coalescent complètement ( $n_{pd} = 1$ ). Après la chambre de combustion, la température est trop faible pour permettre aux particules de coalescer, ce qui entraîne la formation de gros agglomérats composés de plusieurs particules discrètes.

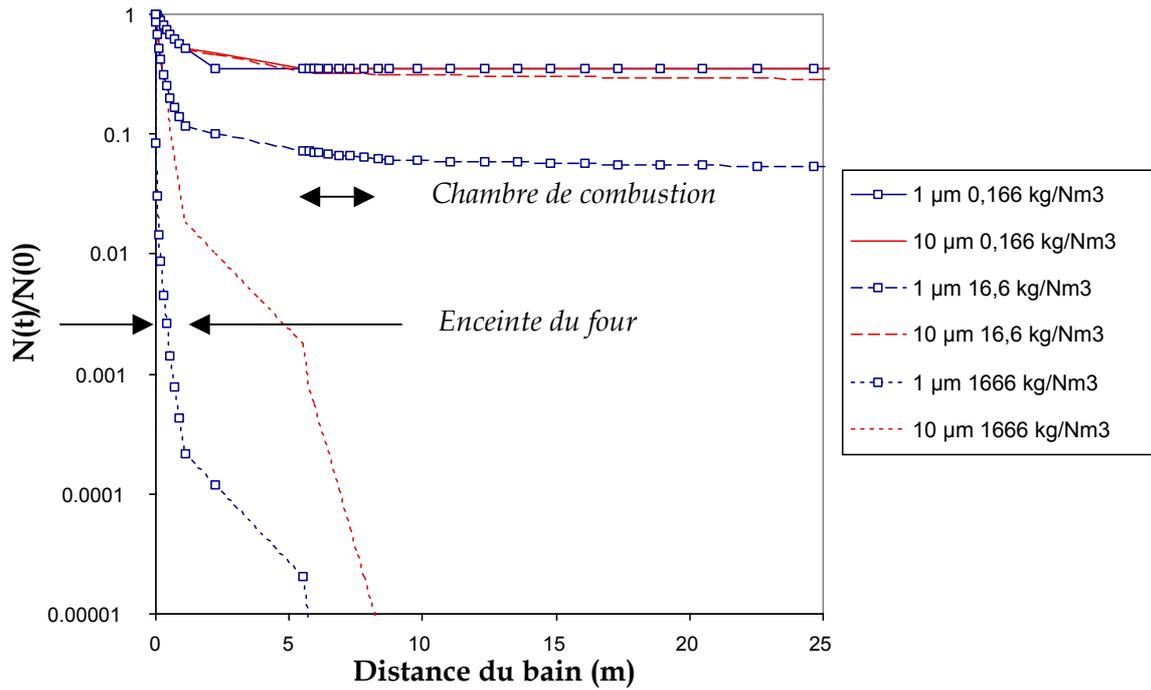


Figure 2.27 : Evolution relative du nombre de particules en fonction de la distance du bain [Huber (2000)]

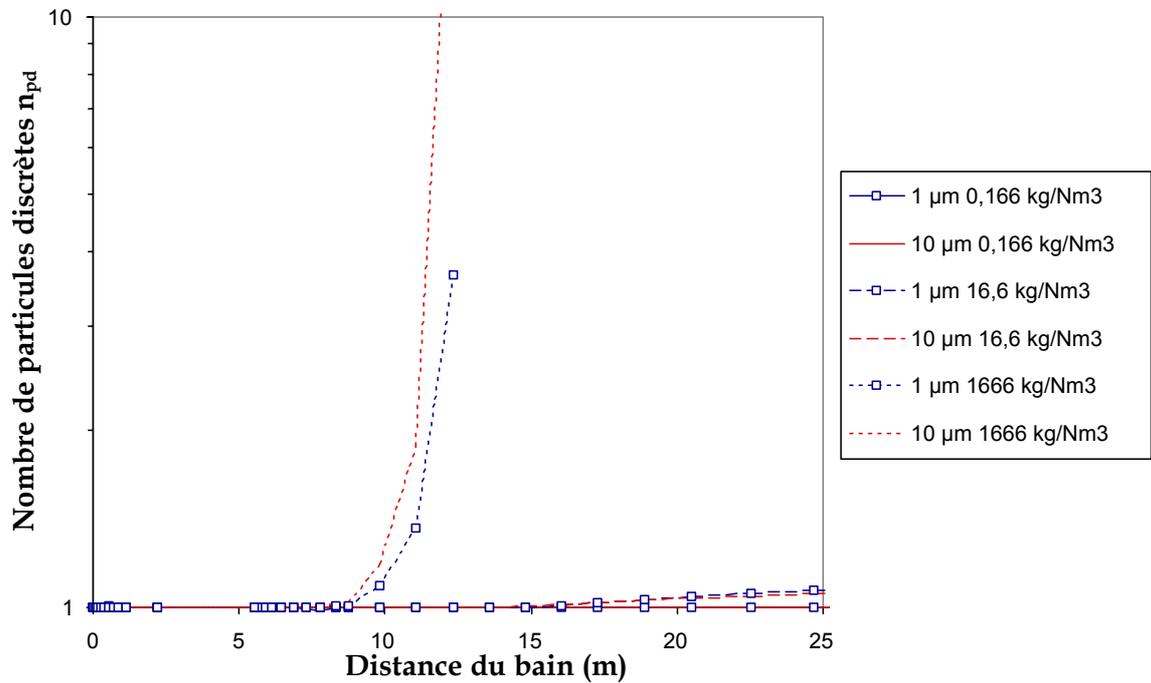


Figure 2.28 : Evolution du nombre moyen de particules discrètes constituant les agglomérats [Huber (2000)]

Comme on peut le voir, ce modèle donne une description de l'évolution des propriétés moyennes des poussières au four électrique à arc, sans prendre en compte la granulométrie réelle des particules (voir § II.1.2). L'auteur n'a en effet pas cherché à décrire finement l'évolution de la morphologie des agglomérats, mais plutôt à préciser les mécanismes et les facteurs qui gouvernent l'agglomération.

## II.2.4. Conclusion

L'étude bibliographique de la formation des poussières au four électrique à arc met en évidence la diversité des mécanismes impliqués, que l'on peut séparer en deux catégories : les mécanismes d'émission de précurseurs de poussières et les mécanismes de transformation des précurseurs en poussières.

Parmi les mécanismes d'émission des précurseurs, l'envol direct de particules solides lors de l'introduction de matériaux pulvérulents dans l'enceinte du four et les projections à l'impact de l'arc et du jet d'oxygène participent de façon marginale à la formation des poussières. La volatilisation de la charge et les projections par éclatement de bulles de gaz représentent les contributions majeures à la formation des poussières (respectivement environ 30% et 60% de la masse émise). La volatilisation concerne essentiellement le zinc, présent en grande quantité dans les ferrailles recyclées au four électrique et qui constitue la part valorisable des poussières. L'éclatement des bulles de CO à la surface du bain liquide a été très peu étudié bien que ce phénomène ait un rôle prépondérant dans la formation des poussières. Les gouttelettes projetées peuvent être extrêmement fines (quelques centaines de nm à quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ ) et sont donc facilement entraînées dans les conduites de captage après refroidissement.

Après émission, les précurseurs se transforment notamment en évoluant chimiquement et en s'agglomérant. Des progrès dans la connaissance et la maîtrise de l'évolution chimique des poussières dans les fumées ont découlé de la mise au point et de l'exploitation des diagrammes thermodynamiques de prédominance des phases du système Fe-Zn-O. Sur la base de ces diagrammes, il est possible par exemple de déterminer les conditions opératoires favorisant la formation de zincite par rapport aux oxydes mixtes fer-zinc. Ce point est d'importance puisque seule la zincite peut être extraite des poussières lors de leur traitement par des procédés hydrométallurgiques. En revanche, l'agglomération des poussières et l'évolution morphologique des particules lors de leur transport au sein des fumées sont des phénomènes encore mal décrits bien qu'ils conditionnent eux aussi en partie la valorisation ultérieure des poussières.

La suite de notre étude vise donc à mieux comprendre et décrire la formation des poussières par éclatement de bulles de gaz puis par agglomération des particules lors du captage. Les projections engendrées par l'éclatement des bulles ont été étudiées en cherchant à mettre en évidence l'influence de la taille des bulles, de la présence de tensioactifs dans le métal et du recouvrement du bain métallique par une couche de laitier. L'agglomération a

été modélisée en prenant en compte la dispersion des tailles de particules, afin d'obtenir une meilleure description de leur évolution morphologique le long du système de captage.



# Chapitre III :

## Etude expérimentale de la formation des poussières par éclatement de bulles de gaz

### SOMMAIRE

---

<b>III.1. Introduction</b> .....	<b>47</b>
<b>III.2. Eléments bibliographiques</b> .....	<b>48</b>
III.2.1. Description du phénomène.....	48
III.2.2. Caractéristiques des émissions.....	68
III.2.3. Le rôle du laitier dans le cas du four électrique.....	78
<b>III.3. Techniques expérimentales</b> .....	<b>81</b>
III.3.1. Description du dispositif de fusion.....	81
III.3.2. Le dispositif de bullage.....	85
III.3.3. Le dispositif de mesure.....	88
III.3.4. Mode opératoire.....	94
III.3.5. Méthodes de caractérisation des particules fines.....	97
<b>III.4. Résultats expérimentaux</b> .....	<b>100</b>
III.4.1. Visualisation du phénomène.....	100
III.4.2. Caractérisation des gouttes de jet.....	110
III.4.3. Caractérisation des gouttes de film.....	113
<b>III.5. Interprétation des résultats expérimentaux et extrapolation au cas du four électrique</b> .....	<b>126</b>
III.5.1. Formation des gouttes de jet.....	126
III.5.2. Rupture du film et formation des gouttes de film.....	127
<b>III.6. Conclusions</b> .....	<b>130</b>

---

### III.1. INTRODUCTION

Parmi les mécanismes d'émission identifiés, l'éclatement des bulles de CO provenant de la décarburation du bain représente la contribution majeure à la formation des poussières au four électrique à arc. L'éclatement génère de fines gouttelettes de laitier et de métal qui sont ensuite entraînées dans les conduites de captage.

L'étude détaillée de ce phénomène, dont nous rapportons les résultats dans ce chapitre, a été l'objet d'une part essentielle de notre travail. Après une synthèse bibliographique des résultats de la littérature, principalement obtenus dans le cas des

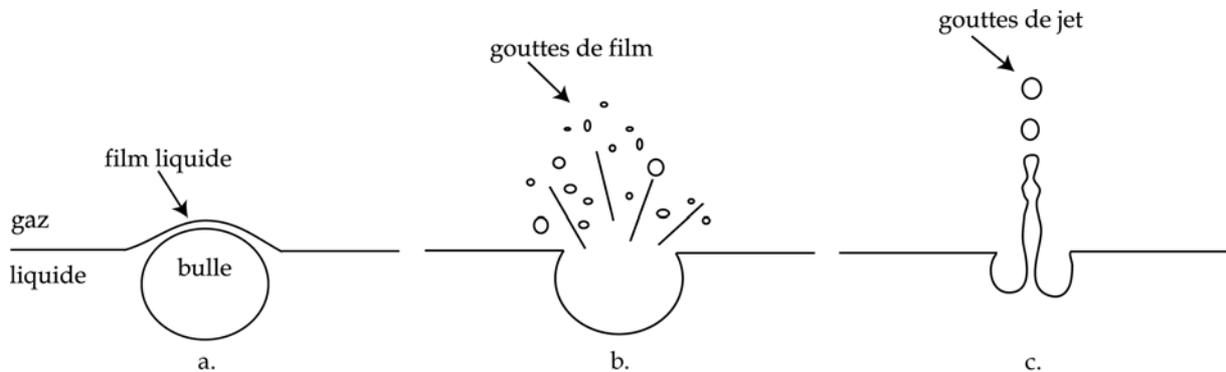
systèmes air-eau, nous présenterons le dispositif expérimental et le protocole opératoire développés au LSG2M pour étudier l'éclatement de bulles de gaz à la surface de l'acier liquide et quantifier les projections qui en sont issues. Les résultats de cette étude expérimentale seront ensuite interprétés puis extrapolés au cas du four électrique à arc.

## III.2. ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES

### III.2.1. Description du phénomène

La majorité des travaux consacrés au comportement et à l'éclatement de bulles de gaz à la surface d'un liquide ont été menés dans le cas des systèmes air-eau. Ces études, qui concernent des domaines aussi variés que le comportement des mousses ou la formation des embruns marins, ont mis en évidence les différentes étapes gouvernant l'éclatement d'une bulle (voir figure 3.1) :

- l'équilibre métastable de la bulle à la surface du liquide et la formation d'un film,
- la rupture du film liquide et la projection de gouttes appelées gouttes de film (*film drops*),
- la formation d'un jet liquide et la projection de gouttes appelées gouttes de jet (*jet drops*).



**Figure 3.1 :** Schéma des trois étapes gouvernant l'éclatement de la bulle

#### *Equilibre métastable de la bulle à la surface du bain*

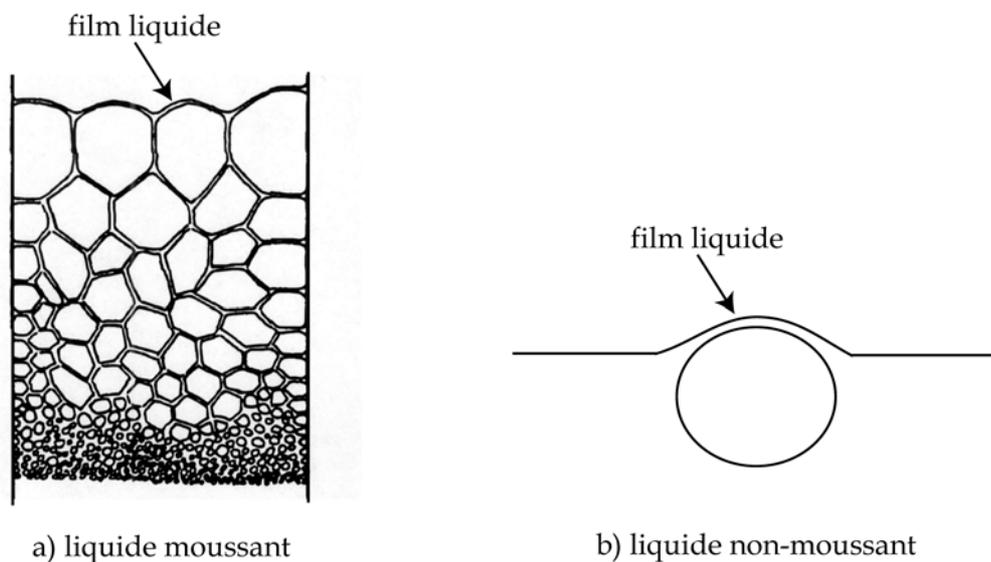
Lorsqu'une bulle atteint la surface d'un liquide, la partie supérieure de la bulle émerge en soulevant un film liquide. Celui-ci s'amincit progressivement sous l'effet de l'ascension de la bulle puis par drainage quand la bulle a atteint sa position d'équilibre à la surface. La position d'équilibre peut être atteinte directement ou après quelques rebonds éventuels sous la surface. On notera que s'il est licite de parler de position d'équilibre, on ne peut pas considérer pour autant que la bulle est en équilibre, puisqu'elle éclate quelques instants plus tard. L'épaisseur du film et la forme adoptée par la bulle avant son éclatement jouent un rôle important dans la formation des projections : la surface et l'épaisseur du film

peuvent influencer la masse de gouttes de film émises, la formation du jet dépend en partie de la forme et de la taille de la cavité laissée à la surface après la rupture du film.

### Épaisseur du film

L'épaisseur du film dépend de la nature du liquide dans lequel s'est formée la bulle. On distingue en général deux grandes catégories de liquides :

- les liquides moussants, dans lesquels les bulles ont une durée de vie relativement longue, ce qui entraîne la formation d'une mousse plus ou moins épaisse à la surface du liquide ; le film correspond alors à la frontière qui sépare les bulles présentes dans la mousse (voir figure 3.2.a).
- les liquides non-moussants, dans lesquels les bulles ont une durée de vie beaucoup plus courte ; seule la partie émergée de la bulle est recouverte d'un film liquide (voir figure 3.2.b).



**Figure 3.2 :** Aspects du film liquide dans un liquide moussant et non-moussant

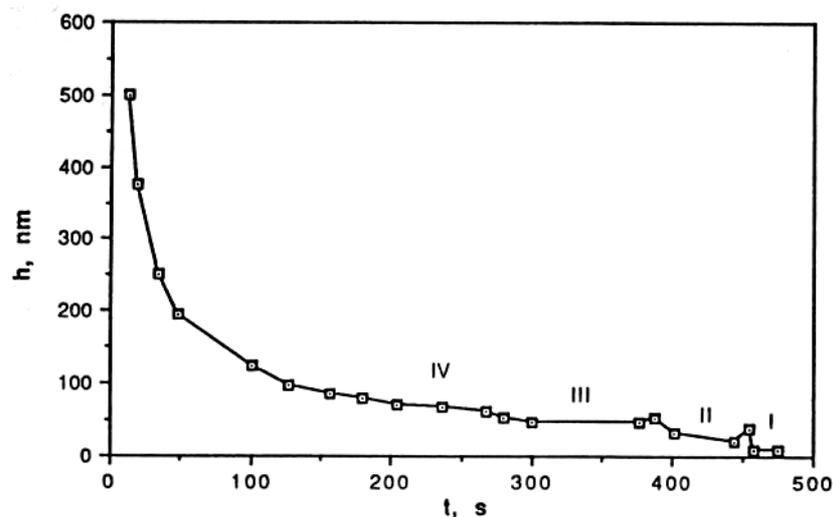
De nombreux auteurs ont cherché à mesurer l'épaisseur du film en utilisant la technique de l'interférométrie : éclairé par un faisceau lumineux, le film réfléchit la lumière en créant des franges d'interférence. Connaissant les caractéristiques du film (coefficient de réflexion du liquide, indice de réfraction du liquide...), on peut calculer l'épaisseur du film à partir de l'intensité de la lumière réfléchie, en utilisant la formule donnée par Sheludko (1967) :

$$\frac{I}{I_{max}} = \frac{(1+r^2)^2 \sin^2\left(\frac{2\pi hn}{\lambda}\right)}{1-2r^2 \cos\left(\frac{4\pi hn}{\lambda}\right)+r^4} \quad (3.1)$$

avec	$I$	intensité de la lumière réfléchie
	$I_{max}$	intensité maximale réfléchie
	$r$	coefficient de réflexion du liquide
	$n$	indice de réfraction du liquide
	$h$	épaisseur du film
	$\lambda$	longueur d'onde de la lumière incidente

La plupart des études visant à déterminer l'épaisseur du film concernent les liquides moussants. Dans ce cas, le film liquide qui entoure la bulle est stabilisé par deux monocouches de molécules tensioactives, l'une sur la surface intérieure de la bulle et l'autre sur la surface extérieure. L'amincissement du film sous l'effet des forces de gravité et de capillarité dépend de la nature et de la quantité de tensioactifs présents dans le liquide. Les résultats des mesures d'interférométrie rapportés dans la littérature montrent que le film subit d'abord une phase d'amincissement extrêmement rapide, puis, dans un deuxième temps, le processus se ralentit et l'épaisseur du film se stabilise autour d'une valeur qui peut varier de quelques dixièmes à une centaine de nm, selon la composition du liquide [Kralchevsky et al. (1990), Bergeron et al. (1992), Langevin et Sonin (1994), Kumar et al. (2002)]. En règle générale, plus la teneur en tensioactifs est élevée, plus l'épaisseur du film est faible. Lorsque l'épaisseur est inférieure à 10 nm, le film est considéré comme métastable, on l'appelle alors « film noir de Newton » (*black Newton film*). Ces films, qui ont été étudiés pour la première fois par Newton, ont une épaisseur très inférieure à la longueur d'onde de la lumière, ils reflètent si peu la lumière qu'ils sont à peine visibles à l'œil nu.

La figure 3.3 montre l'évolution de l'épaisseur d'un film formé à partir d'une solution aqueuse de DTAB (bromure de dodécyltriméthylammonium) [Langevin et Sonin (1994)]. On observe que l'amincissement du film procède par paliers plus ou moins marqués, le dernier, noté I, correspondant à l'état de film noir de Newton dont l'épaisseur est inférieure à 10 nm. Ce type d'évolution reste encore aujourd'hui mal compris.

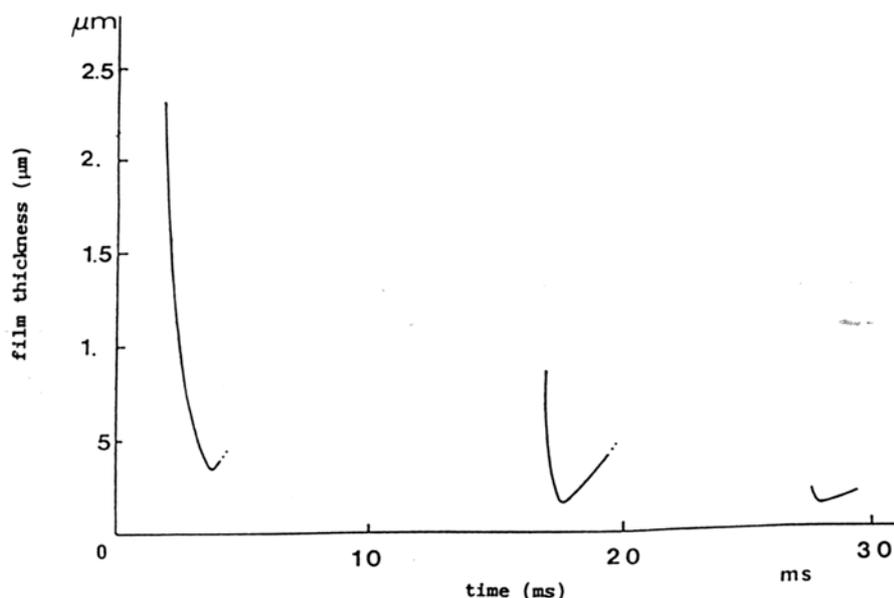


**Figure 3.3 :** Evolution de l'épaisseur d'un film en fonction du temps (solution de DTAB) [Langevin et Sonin (1994)]

Les films métastables observés par Langevin et Sonin (1994) restent relativement rares. D'après Vrij (1966), la majorité des films ont une épaisseur supérieure à 10 nm au moment de leur rupture.

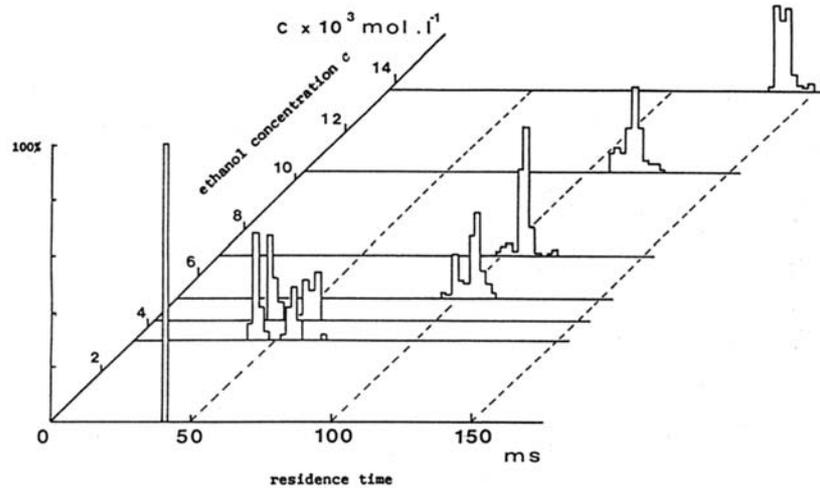
D'autres essais menés par Senée et al. (1999) avec des bulles de champagne mettent en évidence des irrégularités dans l'épaisseur du film. Ces défauts d'uniformité dépendent des caractéristiques du vin testé (année et lieu de fabrication). Pour certaines catégories de vins, la partie centrale du film présente une épaisseur uniforme d'environ 25 nm tandis que sur les bords du film apparaissent des zones irrégulières dont l'épaisseur peut varier entre 50 et 125 nm. Pour d'autres vins, les films prennent un aspect granuleux : de petites zones épaisses apparaissent tandis que la majeure partie du film conserve une épaisseur constante d'environ 15 nm. Contrairement aux liquides étudiés par Langevin et Sonin (1994), le drainage du film n'évolue pas par paliers ; l'épaisseur du film diminue régulièrement avec le temps avant de se stabiliser. L'épaisseur moyenne du film varie entre 15 nm et 25 nm en fonction de l'année de production du vin.

Lorsque le liquide ne mousse pas, la bulle qui arrive à la surface a tendance à « rebondir », ce qui entraîne une oscillation de l'épaisseur du film. La durée de vie de la bulle est extrêmement courte : en règle générale, la rupture a lieu après quelques oscillations, voire dès le premier rebond, selon la taille des bulles et la nature du liquide. Doubriez (1991) a étudié ces phénomènes dans le cas de l'eau distillée et de solutions d'alcool faiblement concentrées, en mesurant l'épaisseur des films par interférométrie. La figure 3.4 montre l'évolution de l'épaisseur du film formé par une bulle ( $d_B = 0,85$  mm) dans une solution d'éthanol ; dans ce cas, il y a rupture du film après trois rebonds de la bulle contre la surface du liquide.



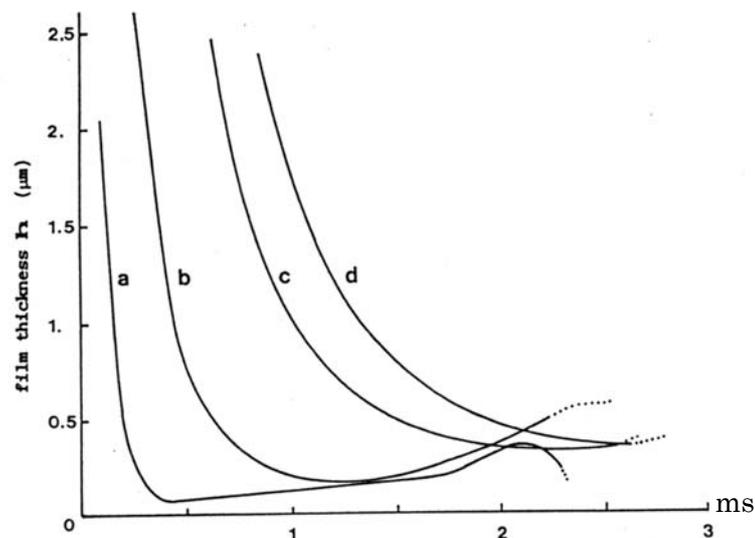
**Figure 3.4 :** Evolution de l'épaisseur du film formé par une bulle ( $d_B = 0,85$  mm) à la surface d'une solution d'éthanol ( $0,2 \text{ mol L}^{-1}$ ) [Doubriez (1991)]

Dans l'eau distillée, les bulles dont le diamètre est inférieur à 0,65 mm éclatent au premier contact avec la surface libre du liquide ; lorsque le diamètre de la bulle est supérieur à 1 mm, l'éclatement intervient au troisième contact. Lors des essais expérimentaux, l'air ambiant contamine peu à peu l'eau distillée, ce qui se traduit par une augmentation du nombre de rebonds précédant l'éclatement de la bulle. De même, en présence d'alcool, l'augmentation de la concentration entraîne une hausse du nombre de rebonds et du temps de séjour de la bulle à la surface (voir figure 3.5).



**Figure 3.5 :** Evolution du temps de résidence d'une bulle en fonction de la concentration en éthanol ( $v_B = 0,6 \text{ mm}^3$ ) [Doubliez (1991)]

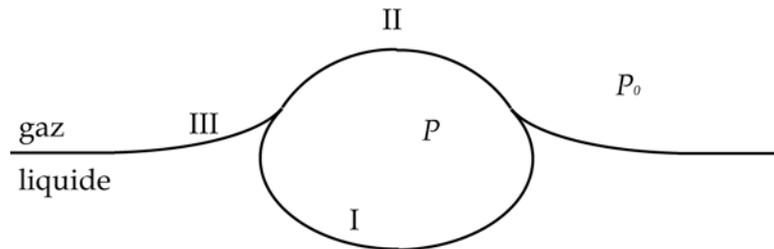
La vitesse de drainage ne dépend pas de la composition du liquide mais de la taille des bulles : plus la taille des bulles est grande, plus la vitesse de drainage est faible ; néanmoins, l'épaisseur du film devient similaire dès le premier rebond (voir figure 3.6) et atteint une centaine de nm avant la rupture du film. Pour les bulles éclatant dès le premier contact avec la surface, l'épaisseur du film est comprise entre 350 et 450 nm.



**Figure 3.6 :** Evolution de l'épaisseur du film en fonction du temps pour différentes tailles de bulles (a :  $d_B = 0,54 \text{ mm}$ , b :  $d_B = 0,70 \text{ mm}$ , c :  $d_B = 0,78 \text{ mm}$ , d :  $d_B = 0,85 \text{ mm}$ ) [Doubliez (1991)]

### Profil de la bulle à la surface du bain

Le profil adopté par une bulle, lorsqu'elle atteint sa position d'équilibre métastable à la surface du bain, comprend deux parties distinctes (voir figure 3.7) : la partie émergée qui adopte la forme d'une calotte sphérique, et la partie immergée dont la forme dépend de la taille de la bulle et des propriétés du liquide (viscosité, tension de surface, liquide moussant ou non).



**Figure 3.7 :** Profil d'une bulle à la surface d'un liquide non-moussant  
(I : partie immergée, II : calotte sphérique)

Plusieurs modèles ont été mis au point pour déterminer les caractéristiques d'une bulle à l'équilibre dans un liquide non-moussant [Toba (1959), Boulton-Stone et Blake (1993), Unger et al. (1996)]. Ces modèles supposent un équilibre entre les forces de pression et les forces de tension superficielle sur les différentes interfaces (voir figure 3.7). En considérant l'épaisseur du film comme négligeable, on obtient les relations suivantes :

- à l'interface entre la bulle et le liquide (interface I sur la figure 3.7) :

$$(\rho_l - \rho_{\text{gaz}})gz = \sigma_{1/g} \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} - \frac{4}{R_0} \right) \quad (3.2)$$

- à l'interface entre la bulle et l'atmosphère (interface II sur la figure 3.7) :

$$P = P_0 + \frac{4\sigma_{1/g}}{R_0} \quad (3.3)$$

- à l'interface entre le liquide et l'atmosphère (interface III sur la figure 3.7) :

$$(\rho_l - \rho_{\text{gaz}})gz = \sigma_{1/g} \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (3.4)$$

avec  $R_0$  rayon de courbure de la calotte sphérique (m)  
 $R_1, R_2$  rayons de courbure principaux de la surface I (m)  
 $P, P_0$  pression de gaz respectivement à l'intérieur et à l'extérieur de la bulle (Pa)  
 $z$  niveau par rapport à la surface libre du liquide en-dehors de la zone affectée par la bulle (m)  
 $\rho_l$  masse volumique du liquide ( $\text{kg m}^{-3}$ )

$\rho_{gaz}$     masse volumique du gaz ( $\text{kg m}^{-3}$ )  
 $\sigma_{l/g}$     tension interfaciale ( $\text{N m}^{-1}$ )

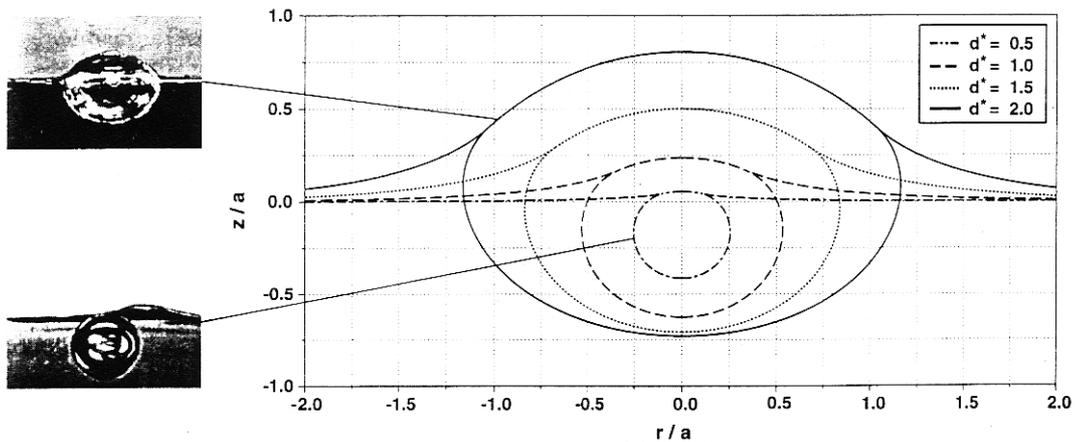
Toba (1959) et Unger et al. (1996) ont déterminé le profil d'une bulle en résolvant les équations (3.2), (3.3) et (3.4) en coordonnées cylindriques par la méthode de Runge-Kutta. Les résultats obtenus sont donnés sous forme adimensionnelle en fonction de  $d_B^*$  défini de la façon suivante :

$$d_B^* = \frac{d_B}{a_c} \quad (3.5)$$

$$a_c = \sqrt{\frac{2\sigma_{l/g}}{(\rho_l - \rho_{gaz})g}} \quad (3.6)$$

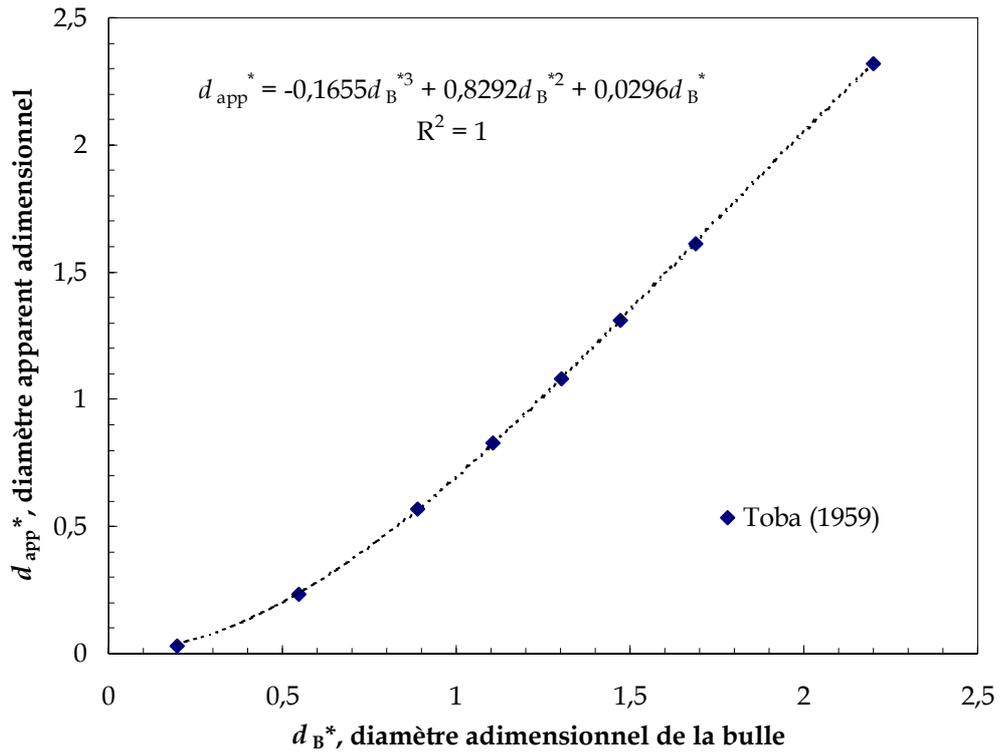
avec :  $a_c$     constante de capillarité du liquide (m)  
 $d_B$     diamètre équivalent en volume de la bulle (m)

La forme de la bulle en équilibre à la surface d'un liquide est donnée sur la figure 3.8 pour différents diamètres adimensionnels. Pour  $d_B^* < 0,5$ , les bulles ont une forme quasi sphérique. Lorsque la taille de la bulle augmente, la poussée d'Archimède est plus forte et la bulle soulève davantage la surface libre ; la partie émergée est de plus en plus étendue et la surface du film s'accroît. Simultanément, la bulle s'aplatit, prenant une forme ellipsoïdale.

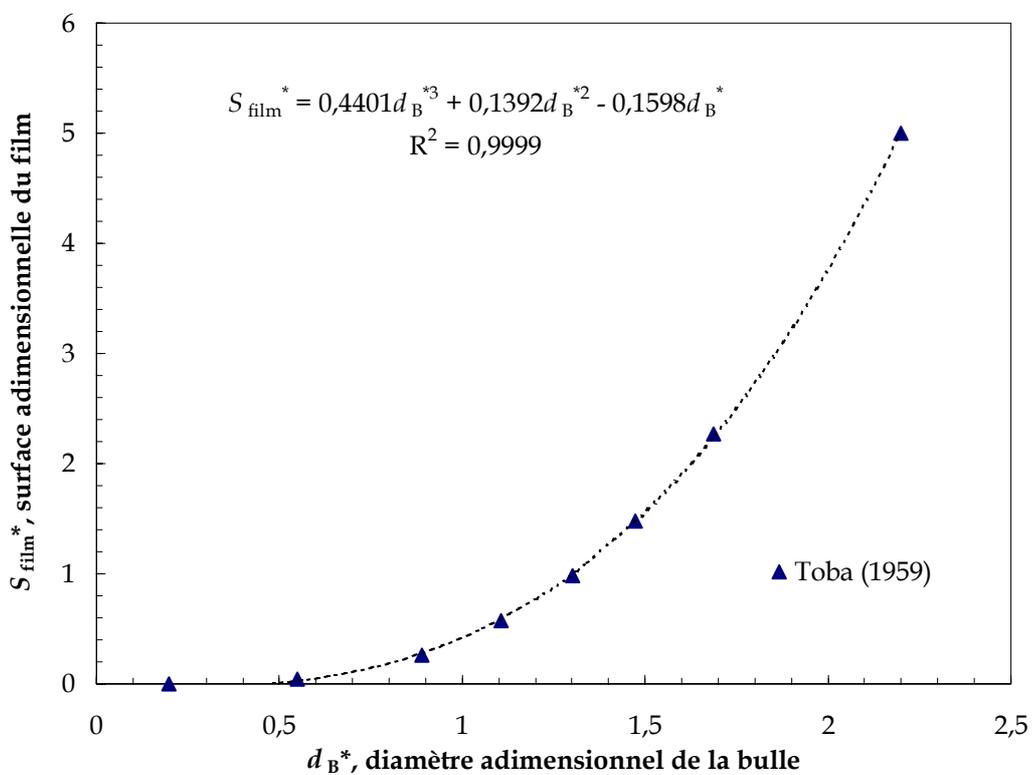


**Figure 3.8 :** Position théorique d'une bulle à l'interface liquide-gaz [Unger et al. (1996)]

A partir des résultats du calcul, on peut établir des relations liant les différentes caractéristiques de la bulle au diamètre équivalent en volume par régression polynomiale. Les figures 3.9 et 3.10 illustrent celles que nous avons déterminées à partir des résultats de Toba (1959) pour le diamètre apparent de la bulle à la surface et pour la surface du film, tous deux exprimés de façon adimensionnelle (respectivement  $S_{film}^* = S_{film}/a_c^2$  et  $d_{app}^* = d_{app}/a_c$ ). Le diamètre apparent en surface est le diamètre de la calotte sphérique qui émerge.



**Figure 3.9 :** Diamètre apparent de la bulle à la surface du liquide en fonction du diamètre équivalent en volume de la bulle, grandeurs exprimées adimensionnellement [d'après Toba (1959)]



**Figure 3.10 :** Surface du film en fonction du diamètre équivalent en volume de la bulle, grandeurs exprimées adimensionnellement [d'après Toba (1959)]

A partir de ces expressions, on peut évaluer l'effet d'une modification de la tension de surface (et donc de la constante de capillarité) sur la position d'équilibre de la bulle. Le tableau 3.1 donne la correspondance entre diamètre équivalent en volume et diamètre adimensionnel pour des valeurs typiques de la tension de surface de l'eau, d'un acier et d'un laitier standard à 1600°C. On remarque que les caractéristiques capillaires de l'acier et du laitier sont très voisines. Bien sûr, il ne s'agit là que d'ordres de grandeurs puisque pour l'acier et le laitier, les valeurs peuvent changer fortement en fonction de la composition.

**Tableau 3.1 :** Diamètres équivalents en volume dans différents liquides en fonction du diamètre adimensionnel

$d_B^*$	$d_B$ (eau) $a_c = 3,8$ mm	$d_B$ (acier liquide) $a_c = 6,7$ mm	$d_B$ (laitier liquide) $a_c = 7$ mm
0,5	1,9 mm	3,3 mm	3,5 mm
1	3,8 mm	6,7 mm	7 mm
1,5	5,7 mm	10,05 mm	10,5 mm
2	7,6 mm	13,4 mm	14 mm

Ainsi, d'après Nakashima et Mori (1992), la tension interfaciale de l'acier liquide à 1600 °C peut varier de 1,8 N m<sup>-1</sup> – tension superficielle du fer pur – à 0,8 N m<sup>-1</sup> – tension superficielle d'un fer riche en soufre et en oxygène – soit une constante de capillarité variant de 7,24 10<sup>-3</sup> à 4,83 10<sup>-3</sup> m. Le tableau 3.2 donne les résultats obtenus pour le diamètre apparent de la bulle à la surface du liquide ( $d_{app}$ ) et la surface du film ( $S_{film}$ ) d'une bulle de 7 mm de diamètre.

**Tableau 3.2 :** Influence de la constante de capillarité sur le diamètre apparent et la surface du film d'une bulle de 7 mm de diamètre

$a_c$	$d_{app}$	$S_{film}$
4,83 mm	6,18 mm	3,26 10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup>
5 mm	6,06 mm	3,15 10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup>
5,5 mm	5,72 mm	2,81 10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup>
6 mm	5,41 mm	2,51 10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup>
6,5 mm	5,13 mm	2,24 10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup>
7 mm	4,87 mm	2,01 10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup>
7,24 mm	4,75 mm	1,90 10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup>

Pour une même taille de bulle, on observe une diminution de la surface du film et du diamètre apparent de la bulle lorsque la tension superficielle du liquide augmente. En effet, l'ajout d'éléments tensioactifs dans le liquide entraîne une diminution des forces de tension superficielle ce qui favorise l'émergence de la bulle par rapport à la surface du liquide sous l'effet de la poussée d'Archimède.

### ***Rupture du film recouvrant la bulle***

On observe la rupture du film lorsque celui-ci atteint une épaisseur suffisamment faible, dont la valeur reste encore mal connue (voir ci-dessus). Lors de la rupture, le film se désintègre en fines gouttelettes, appelées gouttes de film dont la taille varie de quelques centaines de nm à plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$ . Ce phénomène a fait l'objet de nombreuses études mais reste encore méconnu. En effet, la rapidité de la rupture, la finesse des projections et leur dispersion spatiale rendent difficiles la visualisation de l'éclatement et l'observation directe des projections. Plusieurs théories, fondées sur des observations différentes, voire contradictoires, ont été émises pour expliquer ce phénomène. Ces théories reposent principalement sur l'interprétation du mode de rupture du film qui diffère selon les auteurs : pour les uns, la rupture spontanée a lieu en plusieurs points du film de façon quasi simultanée, tandis que pour d'autres, l'hypothèse d'une rupture en un seul point du film apparaît plus probable.

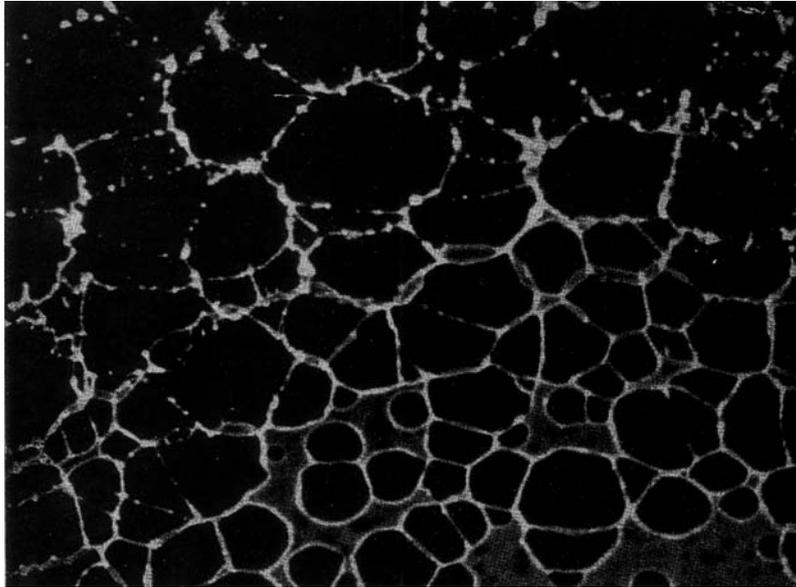
### **Rupture du film en plusieurs points**

D'après De Vries (1958), l'énergie d'activation  $E$  nécessaire à la formation d'un trou dans un film d'épaisseur uniforme  $h$ , est proportionnelle à  $h^2$  et dépend de la tension superficielle du liquide :

$$E = 0,73 \sigma_{\text{lg}} h^2 \quad (3.7)$$

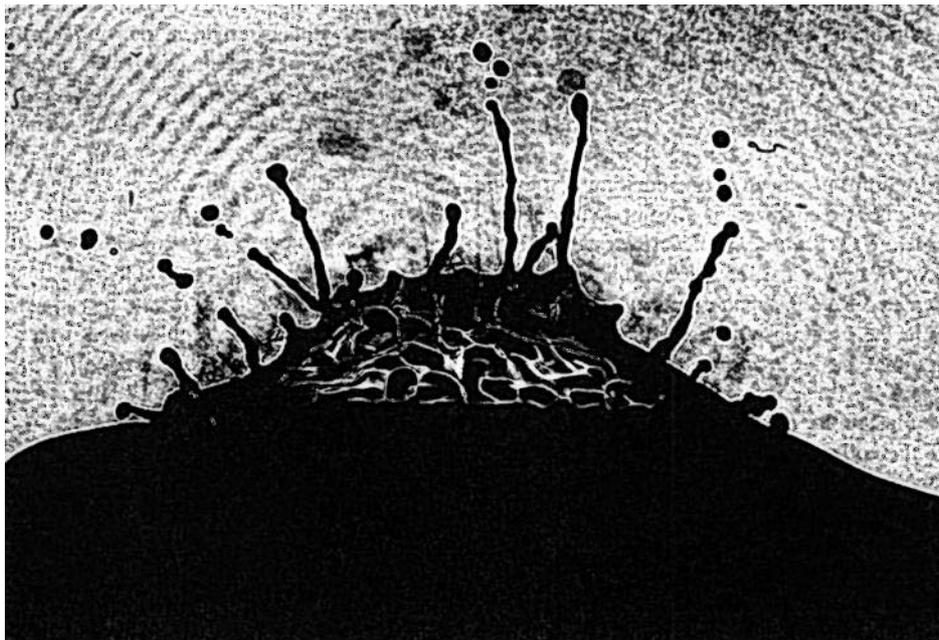
Un tel processus de rupture ne peut concerner que des films extrêmement fins ( $h$  de l'ordre du nm) de type métastable (*black Newton film*). En effet, lorsque  $h$  est supérieure à 10 nm, l'énergie d'activation est si élevée que la probabilité pour qu'un trou se forme de façon spontanée dans un tel film est quasiment nulle. Or, l'épaisseur du film à la rupture est le plus souvent supérieure à 10 nm [Vrij (1966)]. Pour des liquides dont la concentration en tensioactifs est faible, l'épaisseur à la rupture peut même atteindre plusieurs centaines de nm. Dans ce cas, la rupture pourrait s'expliquer par de fortes instabilités dues à la présence de « vagues » capillaires au sein du film [Newitt et al. (1954), De Vries (1958), Vrij (1966), Sheludko (1967), Ivanov et al. (1970)]. Dans ce cas, l'épaisseur du film n'est plus uniforme, celui-ci se couvre d'un réseau de ligaments épais séparés par de fines membranes. La rupture se produirait alors de façon simultanée dans ces zones de faible épaisseur, pour lesquelles l'énergie d'activation est beaucoup plus faible. Cette théorie est appuyée par les mesures d'interférométrie, telles que celles effectuées par Senée et al. (1999) sur les bulles de champagne, qui confirment la présence d'irrégularités dans l'épaisseur des films. Par

ailleurs, la rupture en plusieurs points a été observée par quelques auteurs sur différents types de film. Les premières images ont été obtenues par Dombrowski et Fraser (1954) qui ont mis en évidence ce scénario dans le cas d'un film plan formé sur un cadre. La figure 3.11 illustre leurs observations ; les ligaments, qui correspondent au bord des trous, apparaissent en blanc sur la photographie.



**Figure 3.11** : Rupture simultanée en plusieurs points d'un film liquide tendu sur un cadre [Dombrowski et Fraser (1954)]

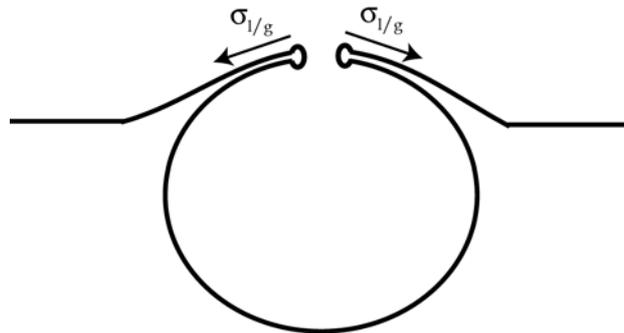
Puis, Resch et al. (1986) ont observé un scénario similaire lors de l'éclatement de bulles d'air à la surface de l'eau. Les images obtenues par holographie montrent la présence de nombreux ligaments liquides qui se désintègrent en gouttelettes (voir figure 3.12).



**Figure 3.12** : Eclatement d'une bulle d'air ( $d_B = 10$  mm) à la surface de l'eau ; image obtenue par holographie [Resch et al. (1986)]

### Rupture du film en un seul point

Dès la fin des années cinquante, certains auteurs évoquent un scénario différent basé sur une rupture du film en un seul point. Ils proposent de décrire l'éclatement de la bulle à partir des hypothèses émises dans le cas d'un film liquide plan par Dupré (1867). Lorsque l'épaisseur du film est suffisamment faible, il se forme un trou dont les bords s'écartent sous l'effet des forces de tension superficielle. La matière du film s'accumule alors dans un bourrelet de forme torique qui peut se désintégrer en donnant naissance à des gouttelettes (voir figure 3.13).



**Figure 3.13 :** Ouverture du film et formation du bourrelet

En partant de ces hypothèses, Dupré (1867) a calculé la vitesse du film en fonction de son épaisseur :

$$U_{\text{film}} = \left( \frac{4\sigma_{l/g}}{\rho_l h} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.8)$$

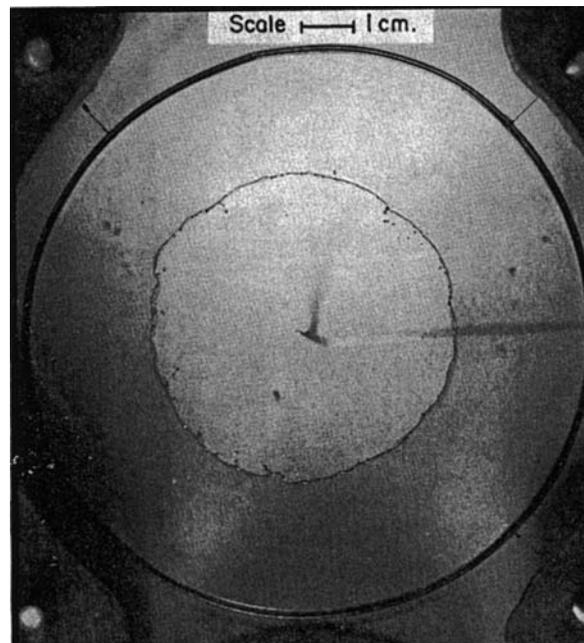
avec :  $U_{\text{film}}$  vitesse d'ouverture du film ( $\text{m s}^{-1}$ )  
 $h$  épaisseur du film (m)

Par la suite, Culick (1960) a montré que cette équation devait être modifiée pour tenir compte de la conservation du moment cinétique appliquée au bourrelet. On obtient alors l'expression suivante qui sera confirmée par les travaux expérimentaux de Frankel et Mysels (1969) :

$$U_{\text{film}} = \left( \frac{2\sigma_{l/g}}{\rho_l h} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.9)$$

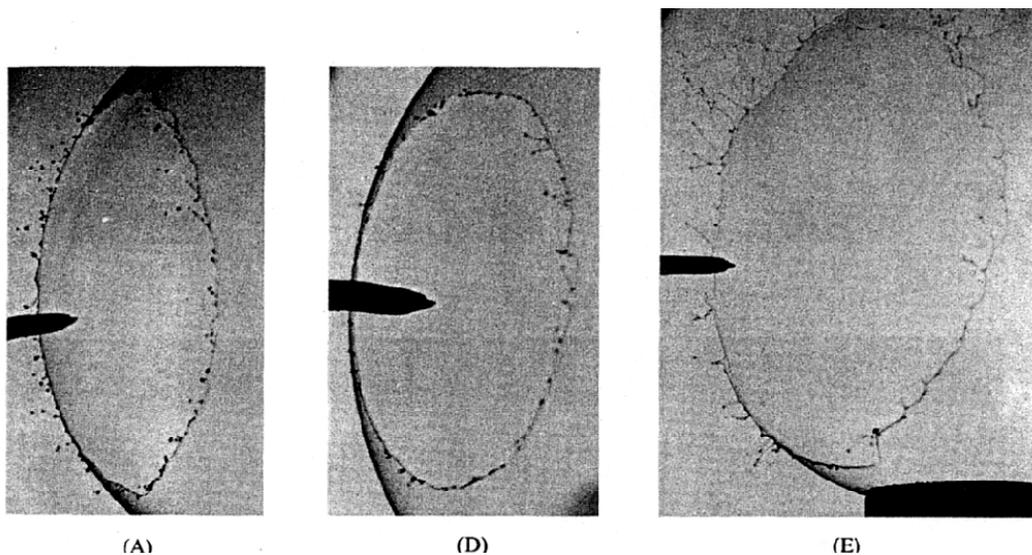
Les premières images du scénario décrit ci-dessus ont été obtenues par Ranz (1959) lors de la rupture d'un film plan provoquée par une décharge électrique appliquée au centre du film (voir figure 3.14). Le bourrelet qui se forme sur les bords du trou présente à intervalles réguliers des renflements qui donnent naissance à des gouttelettes ; la longueur

d'onde du phénomène est comprise entre quatre et six fois le diamètre du bourrelet. Les images consécutives d'une même rupture montrent également que la vitesse d'ouverture du film est constante et vaut dans ce cas  $7 \text{ m s}^{-1}$ .



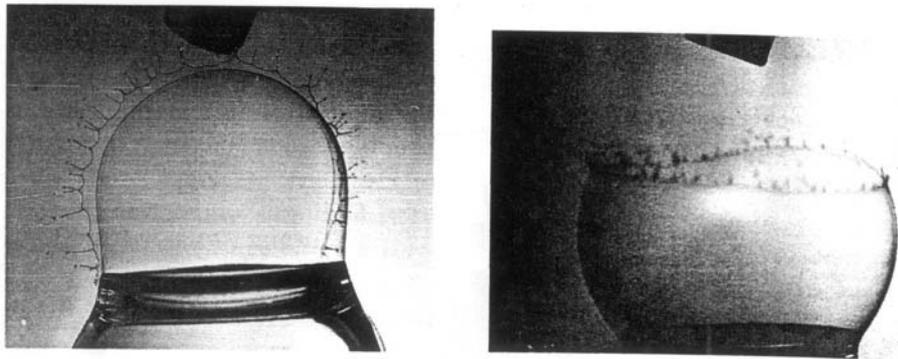
**Figure 3.14 :** Rupture d'un film de savon plan, provoquée par une impulsion électrique [Ranz (1959)]

La formation du bourrelet lors d'une rupture provoquée a également été mise en évidence par MacEntee et Mysels (1968) et Mysels et al. (1971) dans le cas d'un film plan, puis par Herman et Mesler (1987) et par Pandit et Davidson (1990) dans le cas d'une bulle à la surface d'un liquide (voir figure 3.15). On distingue bien sur la figure 3.15 (notamment sur la dernière image) des ligaments liquides qui se désintègrent en gouttelettes, un peu comme sur l'image holographique de Resch et al. (1986) (cf. figure 3.12).



**Figure 3.15 :** Eclatement d'une bulle ( $d_B = 5 \text{ cm}$ ) provoqué par une impulsion électrique [Pandit et Davidson (1990)]

Il faut attendre les travaux de Kowalski et Thomas (1994) pour que ce scénario soit observé lors de l'éclatement spontané d'une bulle. Ces auteurs ont utilisé la photographie ultra-rapide associée à un système de déclenchement de la prise de vue constitué d'un faisceau de lumière traversant la bulle et d'une photodiode. Ce dispositif ne permet pas de saisir les premiers instants de la rupture. Néanmoins, les images obtenues révèlent la formation d'un trou unique accompagné d'un bourrelet d'où se détachent des gouttes de film. La figure 3.16 montre l'éclatement de deux bulles photographié à l'aide de ce dispositif. Sur la première image, la rupture du film a eu lieu au voisinage de la base du film (dans le plan avant de l'image) et s'est propagée en formant un bourrelet qui se déstabilise en formant des ligaments liquides ; ceux-ci se désintègrent en projetant des gouttes de film. Sur la deuxième image, on peut observer le même phénomène mais pour une rupture intervenue à l'apex du film.



**Figure 3.16 :** Eclatement spontané de deux bulles ( $d_B = 2$  cm) [Kowalski et Thomas (1994)]

Ces résultats ont ensuite été complétés par Spiel (1998) qui observe un scénario similaire lors de l'éclatement de bulles d'air à la surface de l'eau (taille de bulle comprise entre 2 et 15 mm). D'après Spiel (1998), les gouttes de film se forment lorsque les forces de tension superficielle ne parviennent plus à maintenir intact le bourrelet liquide. On assiste en fait à une compétition entre l'accélération centripète du tore et les forces de tension superficielle. La force par unité de longueur nécessaire au maintien de l'accélération centripète s'écrit :

$$F_1 = \frac{M_b^1 U_{\text{film}}^2}{R_0} \quad (3.10)$$

avec :  $M_b^1$  masse du bourrelet par unité de longueur ( $\text{kg m}^{-1}$ ),  
 $R_0$  rayon de courbure de la calotte (m).

On obtient alors l'inégalité suivante :

$$\frac{M_b^1 U_{\text{film}}^2}{R_0} > 2\sigma_{1/g} \quad (3.11)$$

A partir de l'équation (3.12), exprimée en coordonnées sphériques, il est possible de déterminer le volume, et donc la masse d'un bourrelet formé à partir d'un film d'épaisseur  $h$  (la rupture ayant eu lieu pour  $\Phi = 0$ ) :

$$\int dV = \int_{R_0}^{R_0+h} \int_0^{2\pi} \int_0^{\Phi_b} r^2 \cdot \sin(\Phi) \cdot d\Phi \cdot d\theta \cdot dr \quad (3.12)$$

$$M_b^l = \frac{\rho_l \cdot h \cdot R_0 \cdot (1 - \cos\Phi_b)}{\sin\Phi_b} \quad (3.13)$$

avec :  $\Phi_b$  angle parcouru par le bourrelet depuis l'éclatement.

En combinant les équations (3.11) et (3.13), et en utilisant l'expression de la vitesse d'ouverture du film en fonction de l'épaisseur du film donnée par l'équation (3.9) [Culick (1960)], on obtient un critère de détachement des gouttes de film indépendant de la taille de la bulle et de la tension superficielle du liquide :

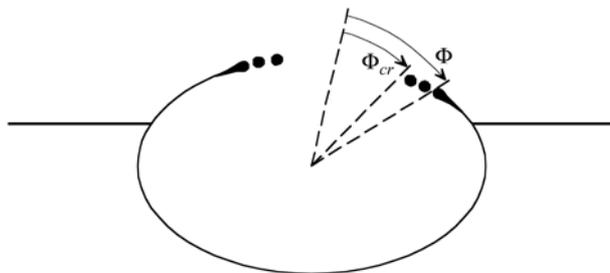
$$\frac{1 - \cos\Phi_b}{\sin\Phi_b} > 1 \quad (3.14)$$

Cette expression est valable uniquement si le bourrelet reste parfaitement lisse. En réalité, comme on peut le voir sur les photos précédentes, il se développe des instabilités le long du bourrelet. Rayleigh (1891) a déterminé la longueur d'onde entre deux renflements, celle-ci est proche de  $9e$ , où  $e$  est le rayon du tore. Spiel (1998) montre que ce phénomène entraîne des variations locales de la masse du bourrelet d'un facteur  $k$  ; il faut donc modifier l'expression du critère de détachement :

$$\frac{1 - \cos\Phi_b}{\sin\Phi_b} > \frac{1}{k} \quad (3.15)$$

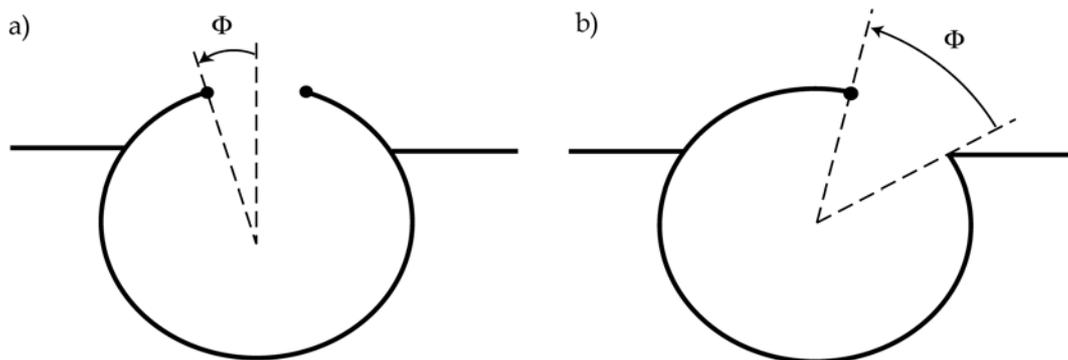
En connaissant la valeur maximale de  $k$ , qui vaut 3,57 d'après le calcul de Spiel (1998), on peut déterminer précisément la valeur du critère de détachement. Ainsi, pour qu'il y ait formation des gouttes de film, le bourrelet doit parcourir un angle  $\Phi_b$  tel que :

$$\Phi_b > \Phi_{\text{critique}} \text{ avec } \Phi_{\text{critique}} = 31,3^\circ$$



**Figure 3.17** : Définition de l'angle critique et de l'angle parcouru par le bourrelet

Deux cas extrêmes peuvent alors se présenter selon la localisation du point de rupture sur la calotte sphérique (voir figure 3.18). Si la rupture a lieu à l'apex de la calotte, le critère est atteint lorsque celle-ci est suffisamment étendue pour former un angle de  $62,6^\circ$ . En revanche, si la rupture a lieu sur le pourtour du film, on observe le détachement des gouttes de film dès lors que la calotte forme un angle supérieur à  $31,3^\circ$ . A partir du modèle de Toba (1959) (ou de Unger et al. (1996)) qui donne la position d'équilibre de la bulle à la surface d'un liquide, il est possible d'exprimer ces deux conditions en termes de taille de bulle. Ainsi, dans le cas de bulles d'air à la surface de l'eau, une calotte formant un angle supérieur à  $62,6^\circ$  correspond à une bulle dont la taille est supérieure à 5,03 mm. Une calotte formant un angle de  $31,3^\circ$  correspond à une bulle de 2,41 mm de diamètre. Cette taille limite théorique correspond donc à la plus petite taille de bulle susceptible de donner naissance à des gouttes de film. Lorsque la taille de la bulle est plus faible, la calotte n'est pas suffisamment étendue pour que le bourrelet puisse parcourir un angle supérieur à  $\Phi_{\text{critique}}$  et il n'y a pas émission de goutte de film. Ce calcul théorique simple est confirmé par la quantification expérimentale du nombre de gouttes de film projetées en fonction de la taille des bulles : Spiel (1998) a montré que, dans le cas des systèmes air-eau, ce nombre de gouttes devient nul pour des bulles dont la taille est comprise entre 2,37 et 2,68 mm.



**Figure 3.18** : Deux cas typiques de rupture : a) initiation de la rupture à l'apex, b) initiation de la rupture sur le pourtour du film

### Cas de l'acier liquide

Les seules données bibliographiques dont nous disposons ont été obtenues par Huber (2000), qui a observé l'éclatement de bulles d'argon à la surface de l'acier liquide par vidéo rapide. Compte tenu de la rapidité du phénomène, l'auteur n'a pu enregistrer une séquence complète d'éclatement. Néanmoins, la reconstitution de l'ouverture du film à partir de plusieurs séquences d'éclatement de bulles de même diamètre montre une rupture du film en un seul point. La figure 3.19 illustre ces observations : les bulles ont un diamètre équivalent moyen de 7,41 mm, le film liquide apparaît en noir et le trou en blanc. Les séquences auxquelles appartiennent les images ont été enregistrées à une vitesse de 5000 images  $s^{-1}$ .

On peut noter la rapidité du phénomène : en moins d'un millième de seconde, le film s'est complètement désintégré. En revanche, la qualité de l'image n'est pas suffisante pour distinguer la présence d'un bourrelet ou la formation des gouttes de film. Par ailleurs l'existence d'une taille de bulle critique en-dessous de laquelle aucune goutte de film ne serait émise n'a pu être mise en évidence expérimentalement. Si l'on tient compte de la théorie développée par Spiel (1998), cette taille de bulle critique devrait se situer entre 3 et 4,55 mm, selon que l'acier est plus ou moins riche en soufre et en oxygène.



**Figure 3.19 :** Reconstitution de l'ouverture du film à partir de plusieurs séquences d'éclatement de bulles d'un diamètre équivalent moyen de 7,41 mm ; les images 1, 4 et 5 appartiennent à la même séquence [Huber (2000)]

### Conclusion

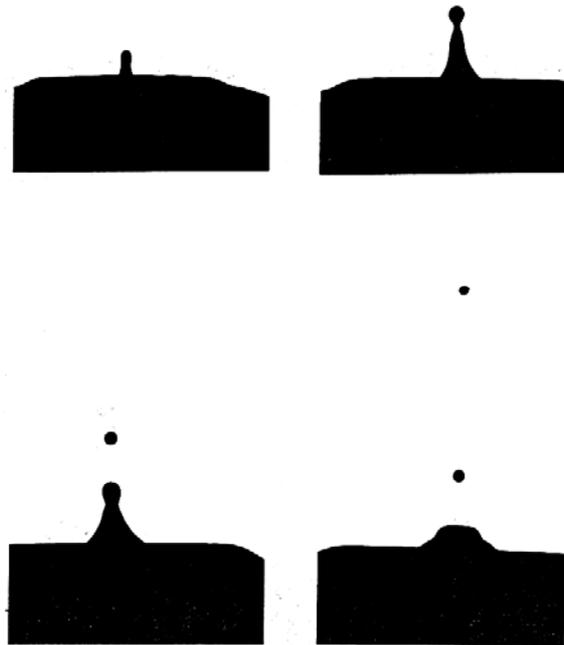
La rupture du film liquide et la formation des gouttes de film sont des phénomènes extrêmement rapides et difficiles à mettre en évidence par les techniques de visualisation classiques. La littérature évoque deux modes de rupture du film : la rupture simultanée en plusieurs points du film et la rupture en un seul point du film. Les deux scénarii ont été observés lors d'essais de visualisation menés sur plusieurs types de solutions aqueuses. Dans le cas de l'acier liquide, une seule étude de ce genre a été menée, qui semble confirmer l'hypothèse d'un mode de rupture en un seul point du film.

Lorsque la rupture a lieu simultanément en plusieurs points du film, l'aspect du film avant la rupture ressemble à un réseau de ligaments liquides épais, séparés par des membranes peu épaisses (quelques nm). La formation des gouttes de film serait due à la désintégration de ces ligaments en fines gouttelettes, après rupture des membranes fines. Pour un point de rupture unique, les bords du trou s'écartent en accumulant progressivement la matière du film dans un bourrelet. Les gouttes de film proviendraient de

la désintégration du bourrelet, résultant d'une compétition entre force d'accélération centripète et force de tension superficielle. A partir d'un calcul théorique simple, Spiel (1998) a mis en évidence l'existence d'un critère de détachement des gouttes de film, que confirment ses essais expérimentaux réalisés dans le cas de bulles d'air éclatant à la surface de l'eau. Ce critère, indépendant des caractéristiques du liquide et de la bulle, n'est valable que dans le cas d'une rupture spontanée en un seul point du film. Connaissant la position d'équilibre de la bulle à la surface de l'eau, il permet de calculer une taille de bulle critique en-dessous de laquelle il n'y aurait aucune goutte de film émise.

### *Formation d'un jet liquide*

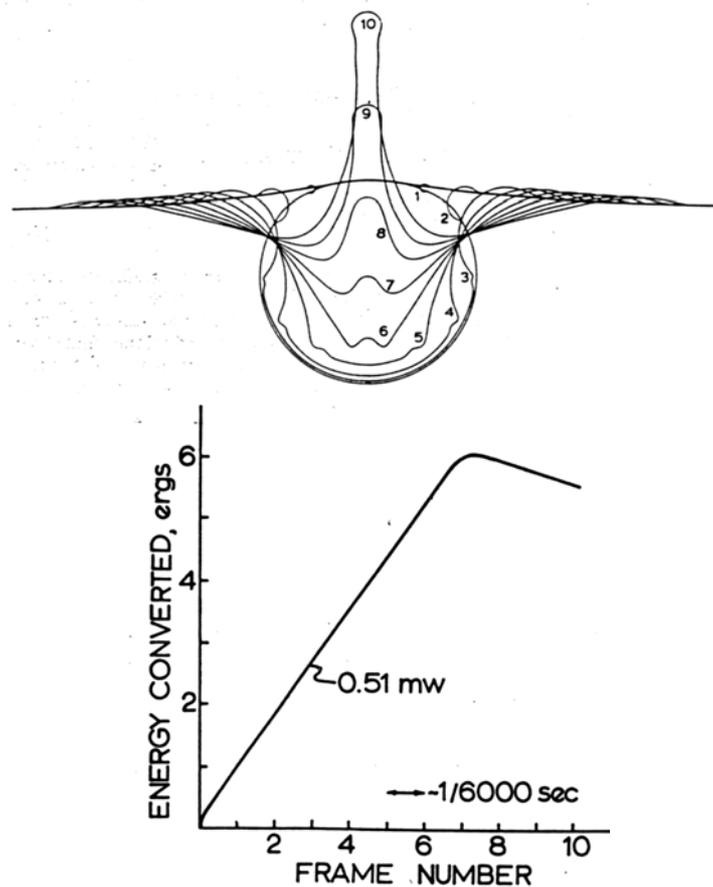
Après la rupture du film, il subsiste à la surface du liquide une cavité qui rapidement se referme en entraînant l'impulsion d'un jet susceptible de donner naissance à une ou plusieurs gouttes appelées gouttes de jet. Contrairement à la rupture du film et à la formation des gouttes de film, la durée de ce phénomène est beaucoup plus élevée (quelques millisecondes), ce qui rend possible son observation à l'aide des outils classiques de visualisation rapide (vidéo, cinéma, photographie rapide). La figure 3.20, tirée des travaux de Resch et al. (1986), illustre le phénomène.



**Figure 3.20 :** Formation d'un jet liquide et projection de gouttes de jet lors de l'éclatement d'une bulle d'air à la surface de l'eau ; images obtenues par photographie rapide [Resch et al. (1986)]

Dans le cas de l'acier liquide, ce phénomène a été mis en évidence par Huber (2000) et par Han et Holappa (2003) grâce à l'utilisation de la vidéo rapide.

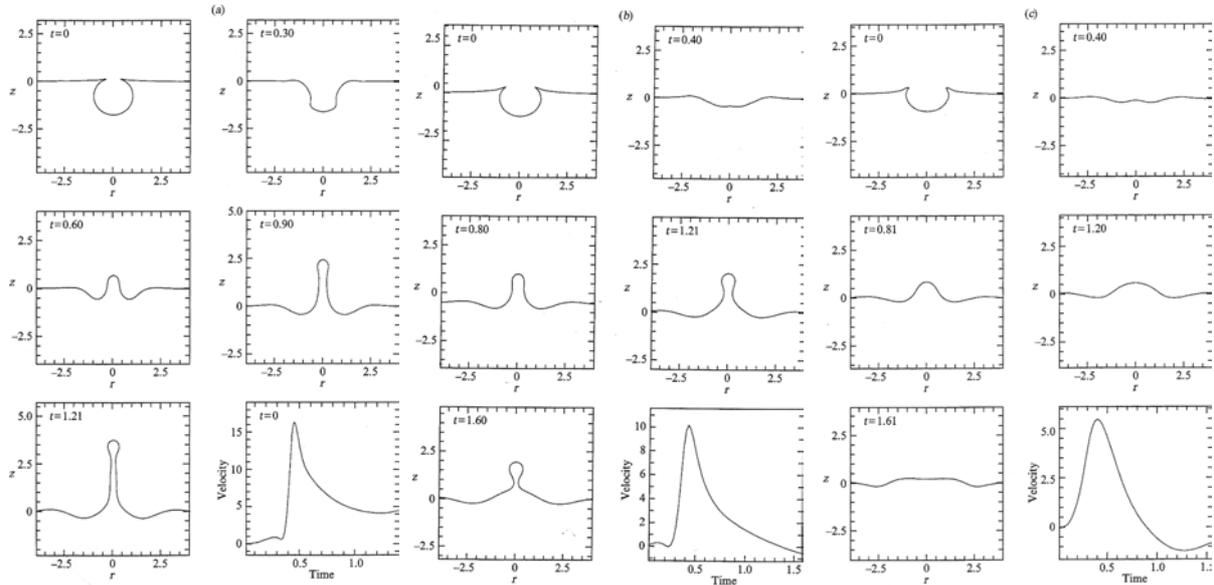
La formation du jet est due à la conversion de l'énergie potentielle stockée à la surface de la cavité laissée par la bulle en énergie cinétique qui entraîne la mise en mouvement du liquide selon une direction verticale ascendante. De nombreux modèles ont été mis au point pour décrire la formation du jet liquide et déterminer le profil de la surface libre du liquide après la rupture du film [MacIntyre (1968), MacIntyre (1972), Boulton-Stone et Blake (1993), Unger et al. (1996)]. La figure 3.21 montre l'évolution de ce profil après l'éclatement d'une bulle de diamètre 1,7 mm dans l'eau de mer, ainsi que l'évolution de l'énergie potentielle convertie en énergie cinétique. Ces résultats ont été obtenus à partir du modèle de MacIntyre (1968). La vitesse de conversion de l'énergie est constante dans les premiers instants qui suivent la rupture du film et la puissance produite est de l'ordre de 0,5 mW. Lorsque le jet commence à s'allonger (profil n°7), une partie de l'énergie cinétique est à nouveau convertie en énergie de surface, ce qui explique la baisse que l'on observe dans le diagramme de conversion.



**Figure 3.21** : Profil de la surface libre du liquide (eau de mer) après éclatement d'une bulle d'air et évolution de l'énergie cinétique associée [MacIntyre (1968)]

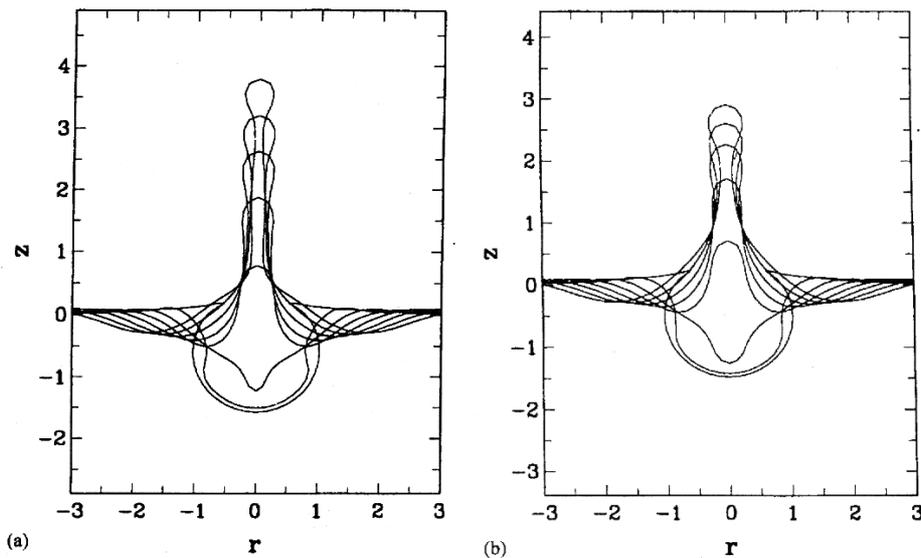
Boulton-Stone et Blake (1993) ont mis au point un modèle similaire à celui de MacIntyre (1968). Les résultats obtenus par le calcul et confirmés par comparaison avec des images obtenues par vidéo rapide montrent l'influence de la taille de la bulle sur la formation du jet. La figure 3.22 présente les profils de surface libre du liquide obtenus par le modèle de Boulton-Stone et Blake (1993) pour trois tailles de bulles : 0,75 mm, 2 mm et 3 mm. Dans le cas des petites bulles, l'éclatement entraîne la formation d'un jet long et fin

(figure 3.22.a). Pour des tailles de bulles plus élevées, le diamètre et la hauteur du jet sont quasiment similaires (figure 3.22.c). Par ailleurs, la vitesse maximale du jet diminue lorsque la taille de la bulle augmente.



**Figure 3.22** : Profil de la surface libre du liquide après rupture du film et évolution de la vitesse de déplacement du liquide en fonction du temps pour trois tailles de bulles (a : 0,75 mm, b : 2 mm, c : 3 mm) [Boulton-Stone et Blake (1993)]

A partir du modèle développé par Boulton-Stone et Blake (1993), Dey et al. (1997) ont étudié l'influence des tensioactifs sur la formation du jet. La figure 3.23 illustre les résultats obtenus pour une même taille de bulle dans le cas d'un liquide pur et après ajout de tensioactifs. En présence de tensioactifs, la hauteur du jet est plus faible et son diamètre plus élevé.



**Figure 3.23** : Profil de la surface libre du liquide après rupture du film pour une bulle éclatant dans un liquide pur (a) et pour une bulle éclatant après ajout d'éléments tensioactifs (b) [Dey et al. (1997)]

La formation des gouttes de jet est due au développement d'instabilités capillaires le long du jet liquide. Ce phénomène porte le nom d'instabilités de Rayleigh à qui l'on doit les premières images d'un jet liquide se désintégrant sous l'effet de ces instabilités. Celui-ci a montré que ces instabilités se développaient lorsque la longueur du jet est supérieure à sa circonférence. L'origine du phénomène est la tendance à former une interface sphérique plus stable que l'interface cylindrique. Weber (1931) a déterminé la longueur d'onde  $\lambda_{\text{Rayleigh}}$  des instabilités en fonction du diamètre du jet  $d_j$  dans le cas d'un fluide non-visqueux. Cette expression a ensuite été confirmée expérimentalement par les travaux de Haelein (1931) :

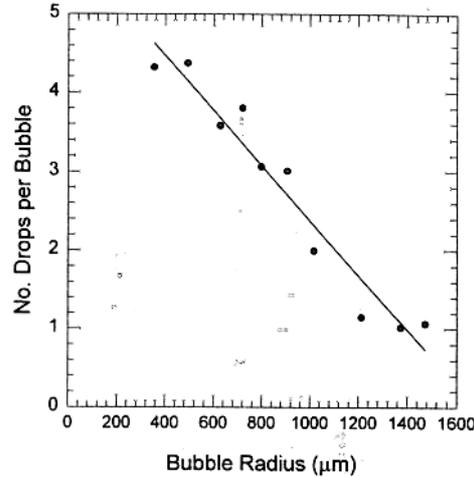
$$\lambda_{\text{Rayleigh}} = \pi d_j \sqrt{2} \quad (3.16)$$

En tenant compte de ces résultats et de ceux obtenus par Boulton-Stone et Blake (1993) et Dey et al. (1997), il apparaît que la formation des gouttes de jet dépend de la taille des bulles et de la présence de tensioactifs dans le liquide. En effet, l'augmentation de la taille des bulles entraîne une diminution de la hauteur du jet et une augmentation de sa circonférence, soit une diminution de la probabilité d'émission d'une goutte de jet. A taille de bulle égale, l'ajout de tensioactifs a un effet similaire.

### III.2.2. Caractéristiques des émissions

#### *Caractéristiques des gouttes de jet*

Dans la plupart des études mentionnées par la littérature, les systèmes de bullage utilisés permettent d'obtenir des bulles dont la taille varie de quelques mm à une vingtaine de mm. Avec de telles bulles, les gouttes de jet ont une taille généralement supérieure à 200  $\mu\text{m}$ . Leur caractérisation est donc parfaitement accessible par les techniques de visualisation classique (photographie ou vidéo rapide). Conformément à ce que nous avons envisagé au § III.2.1, les images obtenues, tant pour les systèmes air-eau [Wu (1989), Newitt et al. (1954), Blanchard (1983), Spiel (1994 a, b), Spiel (1997)] que pour l'acier liquide [Huber (2000)], montrent que le nombre de gouttes de jet augmente lorsque la taille de la bulle mère diminue. L'ensemble de ces auteurs estiment qu'il ne peut y avoir plus de 10 gouttes de jet émises lors de l'éclatement d'une bulle, quelle que soit la taille de cette bulle (voir figure 3.24).



**Figure 3.24 :** Nombre moyen de gouttes de jet émises lors de l'éclatement d'une bulle à la surface de l'eau de mer en fonction de la taille des bulles [Spiel (1997)]

A partir de ces données expérimentales, certains auteurs ont établi des relations empiriques permettant de calculer le nombre moyen de gouttes de jet par bulle  $N_{jet}$  en fonction du diamètre de la bulle mère.

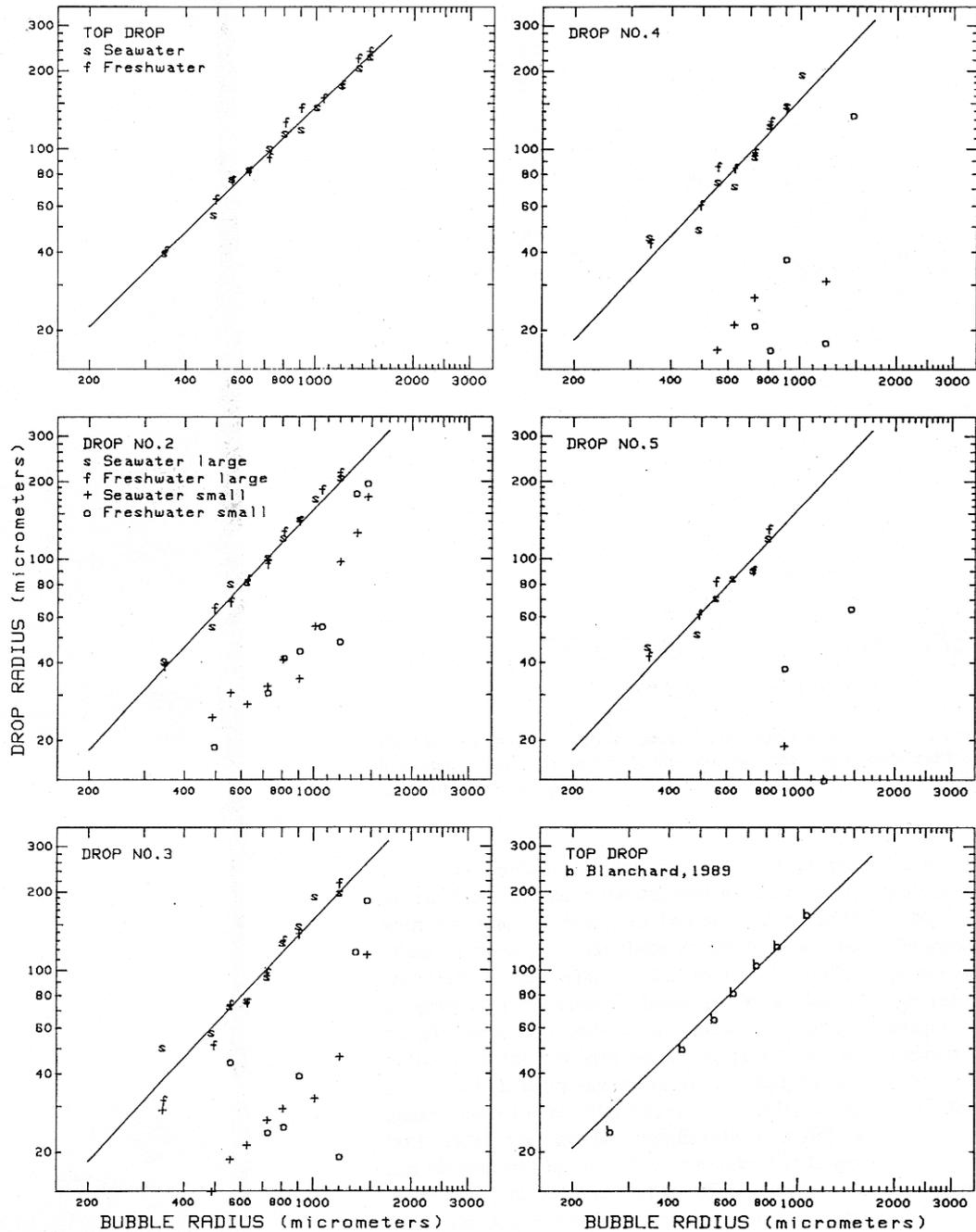
$$N_{jet} = \alpha \cdot \exp\left(-\frac{d_B}{\beta}\right) \quad (3.17)$$

Dans le cas de l'eau de mer,  $\alpha$  vaut entre 7 et 7,5, tandis que  $\beta$  vaut 3 mm [Blanchard (1983), Wu (1989)]. A partir de mesures sur trois tailles de bulle (voir tableau 3.3), Huber (2000) donne également une relation de ce type pour l'acier liquide. Dans ce cas,  $\alpha$  vaut 43,5 et  $\beta$  vaut 1,8 mm.

**Tableau 3.3 :** Taille et nombre de gouttes de jet en fonction de la taille des bulles [d'après Huber (2000)]

Diamètre moyen des bulles ( $d_B$ )	Nombre de gouttes de jet par bulle ( $N_{jet}$ )	Diamètre moyen des gouttes de jet ( $d_{jet}$ )
12,01 mm	0,05	1,6 mm
8,69 mm	0,37	1,27 mm
7,41 mm	0,74	1,17 mm

La figure 3.25, issue des travaux de Spiel (1994b) sur l'éclatement de bulles d'air à la surface de l'eau de mer et de l'eau distillée, montre l'évolution de la taille des gouttes de jet en fonction de la taille de la bulle mère et de leur ordre d'éjection. On remarque que les gouttes de jet issues d'une même bulle ont une taille similaire, proportionnelle à la taille de la bulle mère.



**Figure 3.25 :** Evolution de la taille moyenne des six premières gouttes de jet éjectées en fonction de la taille de la bulle mère [Spiel (1994 b)]

A partir de ses résultats expérimentaux, Spiel (1997) a déterminé une expression empirique de la taille des gouttes de jet, valable pour  $d_B$  compris entre 0,7 et 3 mm ; les valeurs des coefficients sont données dans le tableau 3.4 pour les trois premières gouttes.

$$r_{\text{jet}} = \epsilon r_B^k \quad (3.18)$$

avec  $r_{\text{jet}}$  rayon équivalent en volume de la goutte de jet ( $\mu\text{m}$ )  
 $r_B$  rayon équivalent en volume de la bulle ( $\mu\text{m}$ )

**Tableau 3.4 :** Valeurs des coefficients  $\varepsilon$  et  $\kappa$  [Spiel (1997)]

	$\varepsilon$	$\kappa$
1 <sup>ère</sup> goutte	0,0345 ± 0,0107	1,206 ± 0,044
2 <sup>ème</sup> goutte	0,0172 ± 0,0050	1,316 ± 0,043
3 <sup>ème</sup> goutte	0,000679 ± 0,0005	1,796 ± 0,102

La synthèse des données de la littérature concernant les systèmes air-eau [Newitt et al. (1954), Blanchard (1983), Spiel (1994 a, b), Resch et al. (1986), Spiel (1997)] montre que le diamètre moyen des gouttes de jet représente entre 10 et 18 % du diamètre équivalent en volume de la bulle mère. Pour l'acier liquide, les résultats obtenus par Huber (2000) sur trois tailles de bulles indiquent que la taille moyenne des gouttes de jet représente dans ce cas environ 15 % de la taille de la bulle mère. En extrapolant ce résultat au cas du four électrique à arc dans lequel la gamme de taille supposée des bulles de CO varie de 2 à 20 mm, l'auteur montre que les gouttes de jet émises ont une taille comprise entre 300  $\mu\text{m}$  et 3 mm, soit des particules beaucoup plus grosses que celles contenues dans les poussières de four électrique. Pour Huber (2000), seule une très faible part des gouttes de jet est aspirée par le système de captage des fumées et participe à la formation des poussières, le reste retombant dans le bain.

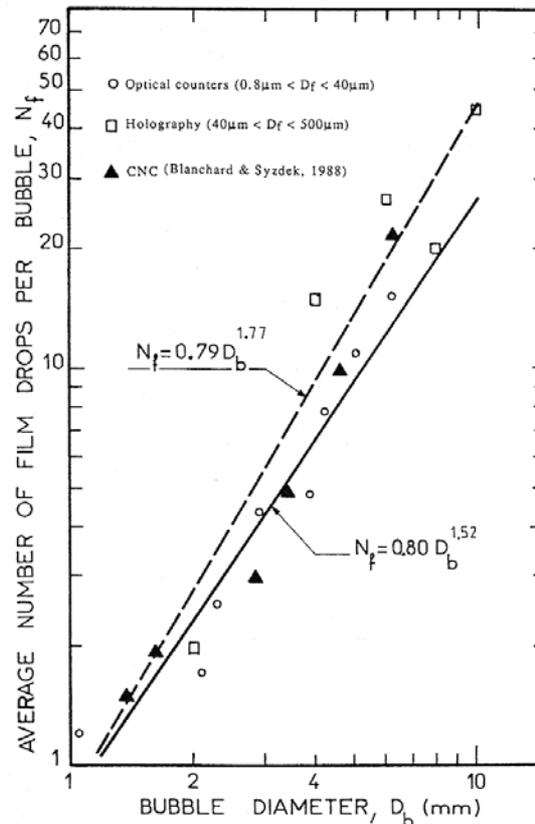
### *Caractéristiques des gouttes de film*

Les gouttes de film couvrent une large gamme de taille qui varie de moins de 1  $\mu\text{m}$  à plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$ . Pour les caractériser, il est donc nécessaire d'associer différentes techniques afin de détecter les plus fines particules comme les plus grosses. Ainsi les systèmes de visualisation par holographie ne détectent que les particules dont la taille est supérieure à 10  $\mu\text{m}$  [Resch et al. (1986), Afeti et Resch (1990)]. Pour les plus fines, l'utilisation de compteurs de particules basés sur des systèmes de détection optique reste la méthode la plus répandue. Dans ce cas, les gouttes sont transportées par un courant gazeux vers le système de caractérisation sous la forme d'un aérosol [Blanchard (1983), Blanchard et Syzdek (1988), Resch et Afeti (1992), Spiel (1998), Huber (2000)].

### Cas des systèmes air-eau

Les résultats présentés dans la littérature dépendent fortement de la technique de caractérisation employée, et peuvent différer en fonction des limites de détection et de la précision de mesure du dispositif. Bien que leur comparaison soit délicate, les résultats mettent en évidence l'influence de la taille des bulles sur le nombre de gouttes de film émises : plus le volume de la bulle est grand, plus le nombre de gouttes de film augmente. La

figure 3.26 qui reprend les résultats obtenus par Blanchard et Syzdeck (1988) et par Resch et Afeti (1991) illustre ce phénomène.



**Figure 3.26 :** Nombre de gouttes de film par bulle en fonction de la taille des bulles dans le cas de l'eau de mer [Resch et Afeti (1991)]

Sur la base de ces résultats expérimentaux, quelques auteurs ont cherché à établir des relations empiriques exprimant le nombre de gouttes de film en fonction de la taille de la bulle mère, en général sous la forme d'une loi puissance :

$$N_{\text{film}} = C_{\text{film}} (d_B)^a \quad (3.19)$$

La valeur des coefficients varie en fonction de la technique de mesure et de la nature du liquide. Dans une revue bibliographique exhaustive, Huber (2000) a synthétisé l'ensemble des relations empiriques relatives aux solutions aqueuses, synthèse que nous reprenons dans le tableau 3.5.

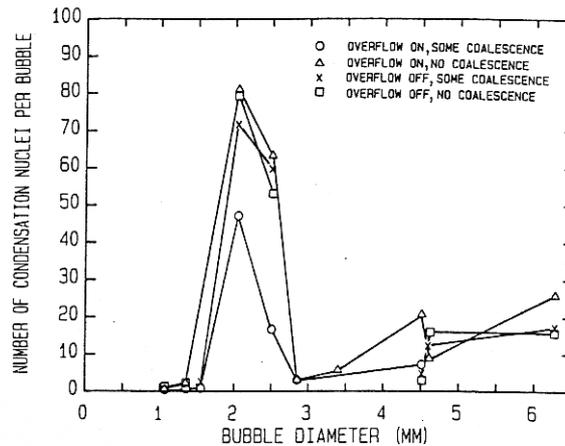
Par ailleurs, l'ensemble de ces études mentionnent l'existence d'une taille de bulle critique en-dessous de laquelle aucune goutte de film n'est détectée. La valeur de cette taille de bulle critique varie d'un auteur à l'autre, allant de quelques centaines de  $\mu\text{m}$  à moins de 4 mm. Ces divergences peuvent provenir de la méthode de mesure ou des conditions d'aspiration de l'aérosol mais également de la nature du liquide.

**Tableau 3.5 :** Emission de gouttes de film, relations expérimentales [Huber (2000)]

Référence des mesures	Diamètre des bulles		Techniques de mesure	Nombre de gouttes				
	min (mm)	max (mm)		Auteur de la loi	Plage de validité (µm)		N <sub>film</sub>	
					min	max	C <sub>film</sub>	a
Blanchard et Syzdek (1988)	1	6,5	CNC TSI 3020	Wu (1994)	0,03	2	0,444	2,08
Resch et al. (1986)	2	8	Holographie	Wu (1990)	10	240	0,65	2,15
Blanchard et Syzdek (1988) + Resch et al. (1986)	1	8	CNC + Holographie	Wu (1990)	0,03	240	1,07	2,15
Resch et Afeti (1991)	1	10	Holographie	Resch et Afeti (1991)	40	500	0,79	1,77
Resch et Afeti (1991)	1	10	Holographie	Wu (1994)	40	500	0,569	1,97
Resch et Afeti (1991)	1	10	Hyac/Royco	Resch et Afeti (1991)	0,8	20	0,8	1,52
Resch et Afeti (1991)	1	10	Hyac/Royco	Wu (1994)	0,8	20	0,43	1,97
Resch et Afeti (1991)	1	10	Kratel AR	Resch et Afeti (1991)	2	40	0,8	1,52
Resch et Afeti (1991)	1	10	Kratel AR	Wu (1994)	2	40	0,43	1,97
Resch et Afeti (1991)	1	10	moyenne	Resch et Afeti (1991)	0,8	500	1,66	1,66
Blanchard et Syzdek (1988) + Resch et Afeti (1991)	1	10	CNC + Holographie + compteur de particules	Wu (1994)	0,03	500	1,68	2
				Wu (1994)	0,03	90	1,68	2
				Wu (1994)	0,03	500	1,68	2

Il faut également signaler les travaux de Blanchard et Syzdek (1988) sur l'éclatement de bulles d'air à la surface de l'eau de mer, qui mettent en évidence l'apparition d'un pic de production de gouttes de film pour des tailles de bulles comprises entre 2 et 2,5 mm (voir figure 3.27). Les résultats ont été obtenus à partir d'un compteur à condensation de noyaux (CNC) qui détecte les particules dont la taille est supérieure à 30 nm avec une efficacité de 100 %. Par ailleurs, les gouttes qui parviennent au compteur ont une taille maximale de 8 µm. Lorsque la taille des bulles est inférieure à 2 mm, le compteur ne détecte quasiment pas de gouttes de film. Entre 2 et 2,5 mm, le nombre de gouttes de film augmente brutalement

jusqu'à 75 gouttes pour décroître de façon tout aussi brutale. Pour des tailles de bulles supérieures à 3 mm, le nombre de gouttes augmente continuellement avec la taille des bulles.



**Figure 3.27 :** Evolution du nombre de gouttes de film en fonction de la taille de la bulle mère pour des bulles d'air éclatant à la surface de l'eau de mer [Blanchard et Syzdek (1988)]

Reprenant les travaux de Blanchard et Syzdek (1988), Resch et Afeti (1992) ont caractérisé les gouttes de film à l'aide de deux compteurs ayant des limites de détection différentes : le premier est un compteur à condensation de nucleus (CNC) qui détecte les particules dont la taille est comprise entre 0,014 et 0,2  $\mu\text{m}$ , tandis que le deuxième est un compteur de type Royco qui détecte les particules dont la taille est comprise entre 0,2 et 5  $\mu\text{m}$ . La figure 3.28 montre les résultats obtenus pour dix tailles de bulles (1,60 - 1,89 - 2,04 - 2,14 - 2,20 - 2,46 - 2,51 - 2,66 - 4,60 et 5,70 mm). Le compteur CNC détecte un premier pic de 80 à 100 gouttes pour  $d_B = 2,14$  mm, puis un deuxième de 20 à 25 gouttes pour  $d_B = 2,51$  mm. En revanche, le compteur Royco ne détecte aucun pic mais indique que le nombre de gouttes de film augmente continûment avec la taille des bulles. Ces travaux confirment les résultats de Blanchard et Syzdek (1988) et montrent que les gouttes de film générées par des bulles dont la taille est comprise entre 2 et 2,5 mm sont beaucoup plus fines que les gouttes émises lorsque la taille des bulles est plus élevée. De plus, il faut noter que la gamme de taille de bulle pour laquelle on observe ce pic coïncide avec la taille de bulle critique calculée par Spiel (1998). Pour ce dernier, ce phénomène serait dû à l'impact du bourrelet avec la surface du liquide. Cet impact entraînerait la formation de fines gouttelettes différentes des gouttes de film classiques. Pour des tailles de bulle supérieures à 2,5 mm, il ne peut y avoir impact et émission de gouttes puisque le bourrelet se désintègre avant d'avoir atteint la surface du liquide. Pour des tailles de bulles inférieures à 2 mm, la bulle émerge très peu à la surface du liquide et la masse du bourrelet, dans lequel s'accumule la matière du film, est insuffisante pour entraîner la formation de fines gouttes lors de l'impact avec la surface du liquide.

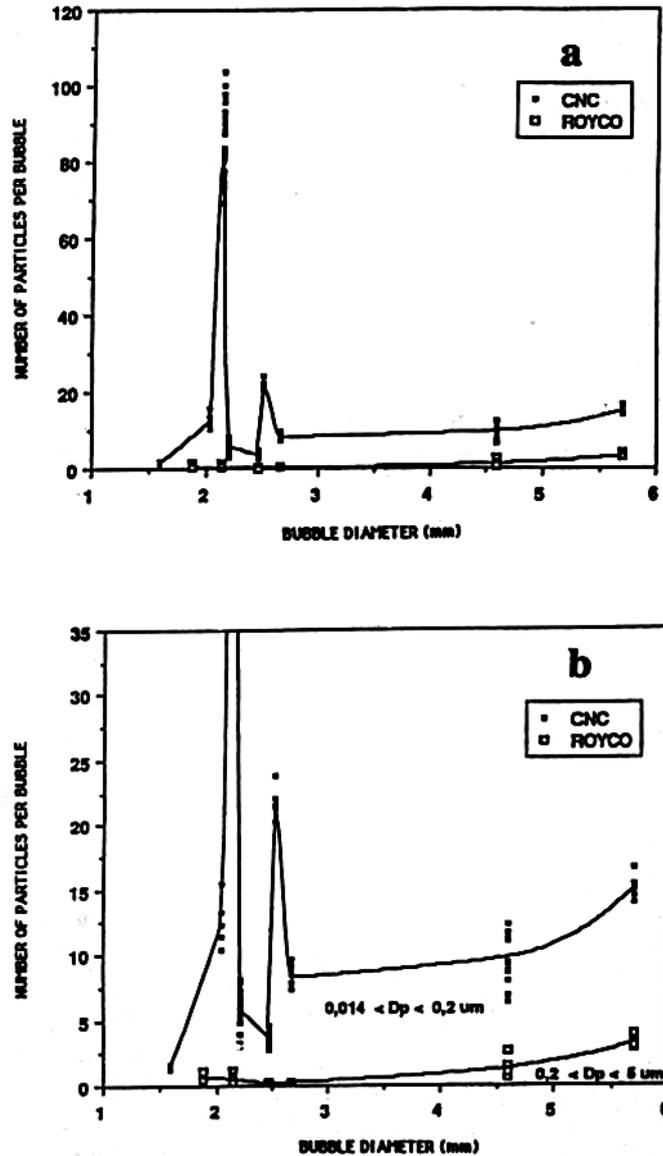
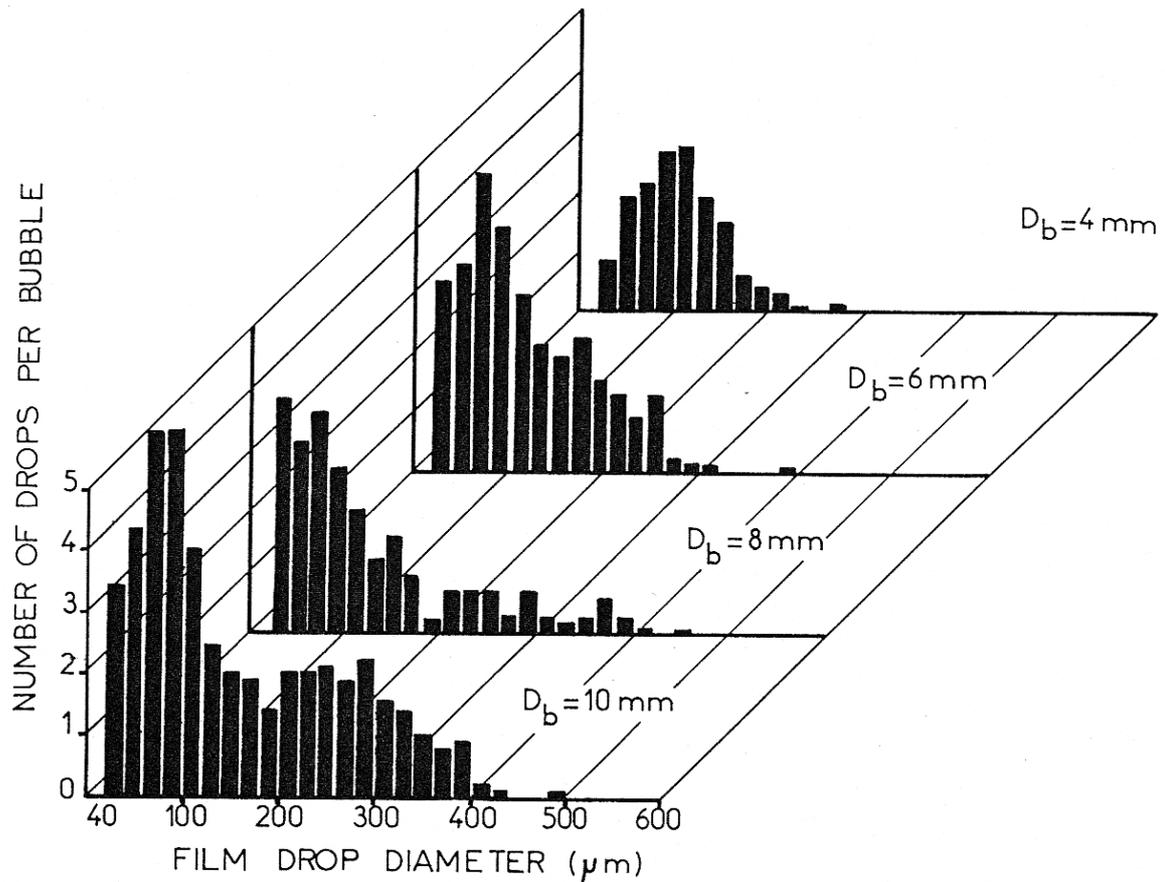


Figure 3.28 : Evolution du nombre de gouttes de film en fonction de la taille de la bulle mère ; le graphe (b) correspond à un agrandissement du graphe (a) [Resch et Afeti (1992)]

De nombreuses études ont également été menées afin de déterminer la distribution de taille des gouttes de film. Les résultats obtenus mettent en évidence l'influence de la taille de la bulle mère : plus le volume de la bulle est élevé, plus la distribution de taille des gouttes de film s'élargit. La figure 3.29 tirée des travaux de Resch et al. (1986) illustre ce phénomène. Ces auteurs ayant utilisé l'holographie, seules les gouttes dont la taille est supérieure à  $10 \mu m$ , ont été détectées. D'autres travaux montrent également l'existence de gouttes de film beaucoup plus fines, dont la taille est comprise entre quelques centaines de nm et une dizaine de micromètres [Blanchard (1983), Blanchard et Syzdek (1988), Kuo et Wang (1997)].



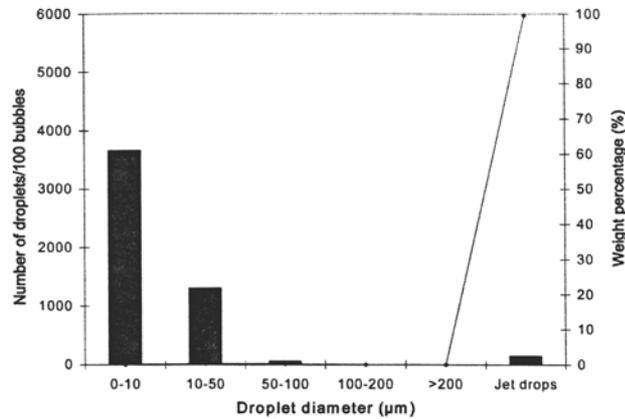
**Figure 3.29 :** Distribution de taille des gouttes de film émises lors de l'éclatement d'une bulle à la surface de l'eau distillée (taille de bulles : 4 mm, 6 mm, 8 mm, 10 mm) [Resch et al. (1986)]

### Cas du métal liquide

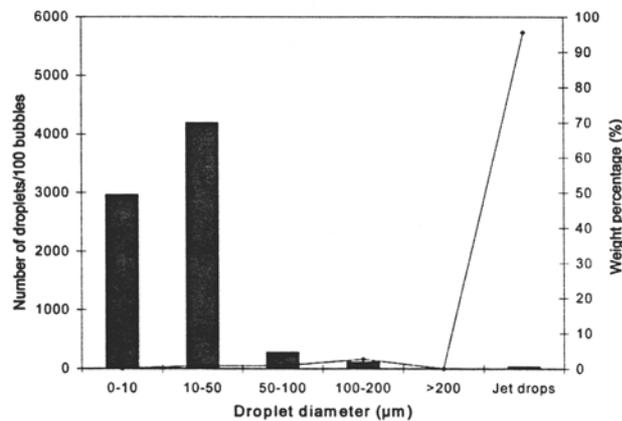
Contrairement aux systèmes air-eau, les données concernant les caractéristiques des gouttes de film dans le cas du métal liquide sont rares et se résument aux travaux de Han et Holappa (2003) et de Huber (2000). Han et Holappa (2003) ont utilisé un système de plaques céramiques disposées au-dessus d'un bain de fer liquide, afin de recueillir les gouttelettes projetées par l'éclatement des bulles de gaz. La taille des particules solidifiées est ensuite déterminées à l'aide d'un microscope optique. Les gouttelettes recueillies rassemblent à la fois des gouttes de film et des gouttes de jet. Pour les différencier, les auteurs ont choisi un diamètre de coupure de 500 μm. Toutes les particules dont la taille est inférieure à 500 μm sont considérées comme des gouttes de film, les autres comme des gouttes de jet. En revanche, les auteurs ne mentionnent pas la taille de goutte minimale que l'on peut mesurer à l'aide de ce dispositif. La figure 3.30 montre les distributions de taille de gouttes obtenues pour différentes tailles de bulles (7,6 mm, 10 mm et 11,8 mm). Comme pour les systèmes air-eau, on observe un élargissement de la distribution de tailles de gouttes et une augmentation du nombre de gouttes de film avec la taille de la bulle. Les auteurs ont également déterminé la masse de projection en pesant avant et après chaque essai les plaques utilisées pour

recueillir les gouttes. Malheureusement, cette technique ne permet pas de différencier la contribution des gouttes de film de celles des gouttes de jet, il est donc difficile d'apprécier la portée de leurs résultats.

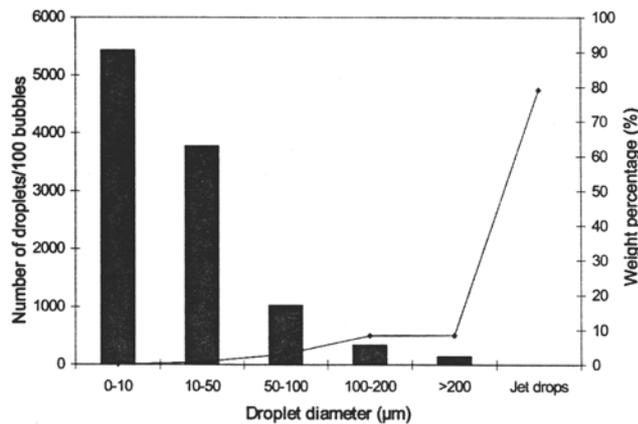
$d_B = 7,6$  mm



$d_B = 10$  mm



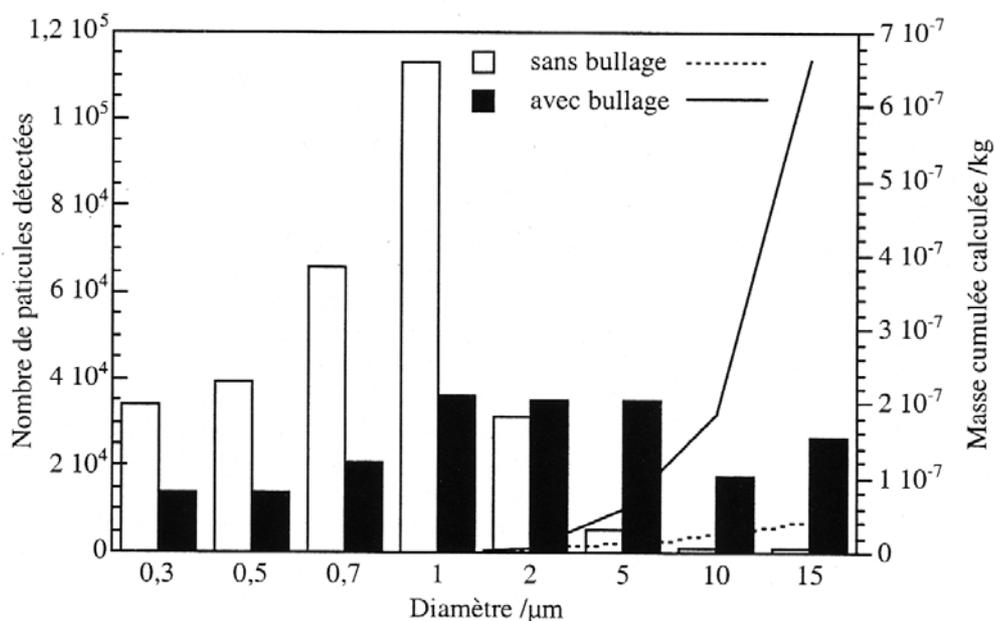
$d_B = 11,8$  mm



**Figure 3.30 :** Distribution des taille de gouttes émises lors de l'éclatement de 100 bulles (diamètre des bulles respectivement 7,6 mm, 10 mm, 11,8 mm) à la surface du fer liquide [Han et Holappa (2003)]

Huber (2000), quant à lui, caractérise les gouttes de film issues de l'éclatement de bulles de gaz à la surface d'un bain d'acier liquide, à l'aide d'un compteur de particules

permettant de détecter des particules dont la taille est comprise entre 300 nm et 20  $\mu\text{m}$ . L'appareil est connecté à une cheminée dans laquelle sont aspirées les particules dont la taille est inférieure à 60  $\mu\text{m}$ , ce qui permet d'écartier les gouttes de jet, beaucoup plus grosses. En revanche, le système recueille indifféremment les gouttes de film et les particules formées à partir des vapeurs issues du bain métallique. Ceci contraint l'auteur à effectuer des mesures avec et sans bullage afin de différencier les contributions des deux phénomènes. Les seules mesures effectuées par l'auteur ont été obtenues pour une taille de bulles de 8 mm (voir figure 3.31) et ne permettent donc pas d'évaluer l'influence de la taille des bulles sur la formation des gouttes de film. En revanche, à partir des résultats donnés par le compteur, l'auteur a calculé la quantité de matière projetée lors de ce même essai (axe de droite de la figure) et ainsi montré le rôle primordial de l'émission des gouttes de film dans la formation des poussières. En effet, les quantités de gouttes de film émises à l'échelle du laboratoire sont très proches de celles attribuées aux projections de métal liquide et de laitier au four électrique à arc.



**Figure 3.31 :** Distribution de taille de l'aérosol généré par un bain d'acier liquide ; en l'absence de bullage ( $d_B = 8$  mm), les particules proviennent de la volatilisation ; en présence de bullage, elles sont issues de la volatilisation et de l'éclatement des bulles [Huber (2000)]

### III.2.3. Le rôle du laitier dans le cas du four électrique

Au four électrique, l'acier liquide est recouvert par une couche de laitier hormis au niveau des zones d'impact de l'arc électrique et de la lance d'injection de l'oxygène. Grâce à l'apport des bulles de CO provenant de la décarburation du bain d'acier, le laitier a tendance à mousser naturellement. Au cours de la fusion, on cherche généralement à favoriser ce phénomène en injectant dans le laitier du charbon en poudre et de l'oxygène qui réagissent en formant des bulles au sein du laitier liquide.

Dans les zones dégagées, les bulles de CO évoluent dans un liquide « non-moussant ». Lorsqu'elles atteignent la surface du bain, elles forment un film d'acier liquide relativement épais (quelques centaines de nm) d'après les études menées sur ce type de liquide. La rupture du film est susceptible de donner naissance à deux types de gouttes :

- des gouttes relativement fines provenant de la matière du film (gouttes de film),
- des gouttes provenant de la désintégration du jet liquide impulsé lorsque la cavité laissée par la bulle à la surface du liquide se referme (gouttes de jet).

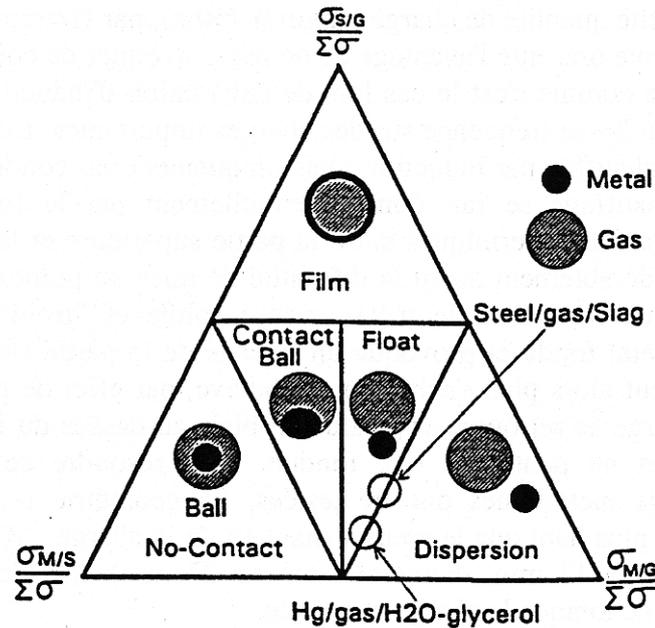
En l'absence de laitier, ces gouttes sont constituées exclusivement d'acier liquide. L'étude bibliographique montre que leur nombre et leur taille dépend de la taille des bulles mais également de la présence de tensioactifs (par ex. : soufre et oxygène) dans l'acier.

Dans les zones recouvertes par le laitier, les bulles de CO qui se sont formées au sein du bain d'acier doivent traverser l'interface métal-laitier puis l'épaisseur du laitier avant d'atteindre la surface. La formation du film et l'émission de gouttes après rupture du film dépendent de l'état du laitier. Si celui-ci ne mousse pas, on se retrouve dans le cas précédent : l'épaisseur du film est supérieure à 100 nm et l'éclatement de la bulle peut entraîner l'émission des deux types de gouttes (gouttes de film et gouttes de jet). Si le laitier est moussant, l'épaisseur du film est beaucoup plus faible : de quelques nm à moins de 100 nm. Par ailleurs, l'éclatement d'une bulle correspond uniquement à la rupture du film (émission de gouttes de film) et ne s'accompagne vraisemblablement pas de la projection de gouttes de jet.

Quel que soit l'état du laitier, il est probable que la composition des gouttes soit plus complexe que dans les zones dégagées. En effet, à la traversée d'une interface liquide/liquide, une bulle entraîne une petite partie du liquide inférieur dans le liquide supérieur, sous la forme d'une colonne située sous la bulle et d'un film entourant la bulle. La désintégration de la colonne et du film conduit à la formation de gouttes de liquide inférieur dans le liquide supérieur. Au four électrique, ce phénomène est très important car il participe à l'augmentation de la surface d'échange entre le métal et le laitier en créant une suspension de gouttelettes métalliques au sein du laitier.

Le stabilité du film entourant la bulle après la traversée de l'interface liquide/liquide a été étudiée par Conochie et Robertson (1980). A l'équilibre, ces auteurs dénombrent cinq morphologies stables qui dépendent des tensions superficielles du gaz et des deux liquides (voir figure 3.32) :

- le film liquide entourant la bulle ne se rompt pas ;
- le film liquide pénètre à l'intérieur de la bulle en formant une gouttelette en suspension dans la bulle (pas de contact avec la surface intérieur de la bulle) ;
- le film liquide pénètre à l'intérieur de la bulle en formant une gouttelette qui repose sur le fond de la bulle ;
- le film liquide se rompt en formant des gouttelettes qui restent accrochées à la surface extérieure de la bulle ;
- le film liquide se rompt en formant des gouttelettes qui se dispersent dans le liquide supérieur.



**Figure 3.32 :** Morphologie du film entourant une bulle après la traversée d’une interface liquide/liquide en fonction des tensions superficielles des deux liquides et du gaz [Conochie et Robertson (1980)]

Lorsqu’une bulle de CO traverse l’interface acier/laitier, le diagramme thermodynamique précédent indique que le film se rompt et qu’il y a formation de gouttelettes qui peuvent rester accrochées à la bulle ou se disperser dans l’acier. Cependant, l’étude de Conochie et Robertson (1980) considère uniquement les situations d’équilibre stable sans tenir compte des aspects cinétiques. En effet, la rupture du film est précédée d’une phase de drainage qui a été mise en évidence par Han et Holappa (2003) et par Chevrier et Cramb (2000). Ceux-ci ont observé le comportement de bulles à l’interface acier/laitier à l’aide d’un système de fluorescence X couplé à une caméra vidéo. Pour une interface entre un acier liquide et un laitier composé d’Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (47 %) et de CaO (53 %), la durée de l’intervalle qui sépare l’arrivée de la bulle de la rupture du film peut varier de moins de 0,3 s à plus de 6 s pour des conditions expérimentales similaires. Par ailleurs, la modélisation du phénomène développée par Feiterna et al. (2000) tend à montrer que la quantité de métal entraîné dans le laitier dépend de la taille de la bulle. Il est donc probable que le comportement du film dépende non seulement des caractéristiques des deux liquides et du gaz mais également des dimensions, du temps de drainage, de la vitesse d’ascension de la bulle et de l’épaisseur du laitier. En fonction de ces paramètres, la bulle peut encore être recouverte par un film d’acier liquide lorsqu’elle atteint la surface du laitier ou transporter une gouttelette de métal. Ainsi, même en cas de recouvrement par du laitier, les projections générées par l’éclatement des bulles peuvent être constituées de métal, de laitier ou d’un mélange des deux liquides. La présence de ce type de gouttelettes est confirmée par l’observation et l’analyse d’échantillons de poussières au microscope électronique (voir § II.1.2). Par ailleurs, l’analyse de la provenance des poussières par la technique des traceurs (voir § II.2.1) montre que les projections de métal liquide représentent une part nettement plus élevée que celle des projections de laitier.

### III.3. TECHNIQUES EXPERIMENTALES

A partir des résultats de l'étude bibliographique, nous avons développé un montage expérimental permettant d'étudier l'éclatement de bulles de gaz à la surface de l'acier liquide et de caractériser les projections qui en sont issues. Le montage peut être divisé en trois parties distinctes :

- le dispositif de fusion de la charge d'acier développé à partir d'un four à induction sous vide,
- le dispositif de bullage, mis au point à partir d'une étude bibliographique et expérimentale du rôle des paramètres opératoires sur la taille des bulles formées,
- le dispositif de mesure constitué d'un système de visualisation basé sur l'utilisation de la vidéo rapide et d'un système de captage des particules fines.

#### III.3.1. Description du dispositif de fusion

##### *Le réacteur de fusion*

Le dispositif expérimental que nous avons mis au point est basé sur un four à induction sous vide (VIM: Vacuum Induction Melting), existant au laboratoire et précédemment employé par Huber (2000) pour réaliser des essais expérimentaux similaires. A l'origine, ce réacteur (four Leybold) est destiné à l'élaboration sous vide de grosses charges métalliques (environ 15 kg) par induction basse fréquence (4 kHz). Dans le cadre de cette étude, la configuration du four a été modifiée afin d'y adapter un dispositif de chauffage permettant de fondre une petite quantité d'acier (environ 150 g) à pression atmosphérique sous atmosphère contrôlée d'argon (voir figure 3.33). Un nouvel inducteur, dimensionné spécifiquement pour ce type d'essais, a été mis au point en collaboration avec Christian Ernst (Laboratoire Madylam - Grenoble) qui a réalisé les calculs permettant de déterminer les dimensions de la bobine. Cet inducteur, utilisé à basse fréquence, permet de fondre la charge par l'intermédiaire d'un suscepteur en graphite dans lequel est inséré un creuset en alumine fondue ( $d_{ext} = 50$  mm,  $d_{int} = 44$  mm,  $H = 75$  mm). Le chauffage ne se fait donc pas par induction sur le métal mais uniquement par conduction thermique et par rayonnement du suscepteur vers le creuset. Ce système présente l'avantage de ne pas provoquer de courants de convection au sein du métal liquide comme c'est le cas lors de l'utilisation d'induction haute fréquence sur de petites charges ou d'induction basse fréquence sur des charges importantes.

Afin de réduire les pertes thermiques par rayonnement, le suscepteur est entièrement recouvert de feutre en fibre de carbone (fabricant Carbone-Lorraine) et inséré dans un cylindre réfractaire en alumine (fabricant Degussa) qui l'isole de l'inducteur. Le suscepteur est posé sur un cylindre en alumine frittée (fabricant Degussa) et l'ensemble (creuset/suscepteur/cylindre en silimanite/cylindre en alumine) est soutenu par un disque en silice (marque Rotosil, fabricant Heraeus) comme on peut le voir sur la figure 3.33. Un pyromètre bichromatique à visée optique permet de déterminer la température de la charge

à travers un hublot du four, dès que celle-ci atteint 1100 °C. Avec ce dispositif, il n'y a aucune difficulté pour fondre la charge d'acier et la porter à des températures comprises entre 1600 et 1650 °C.

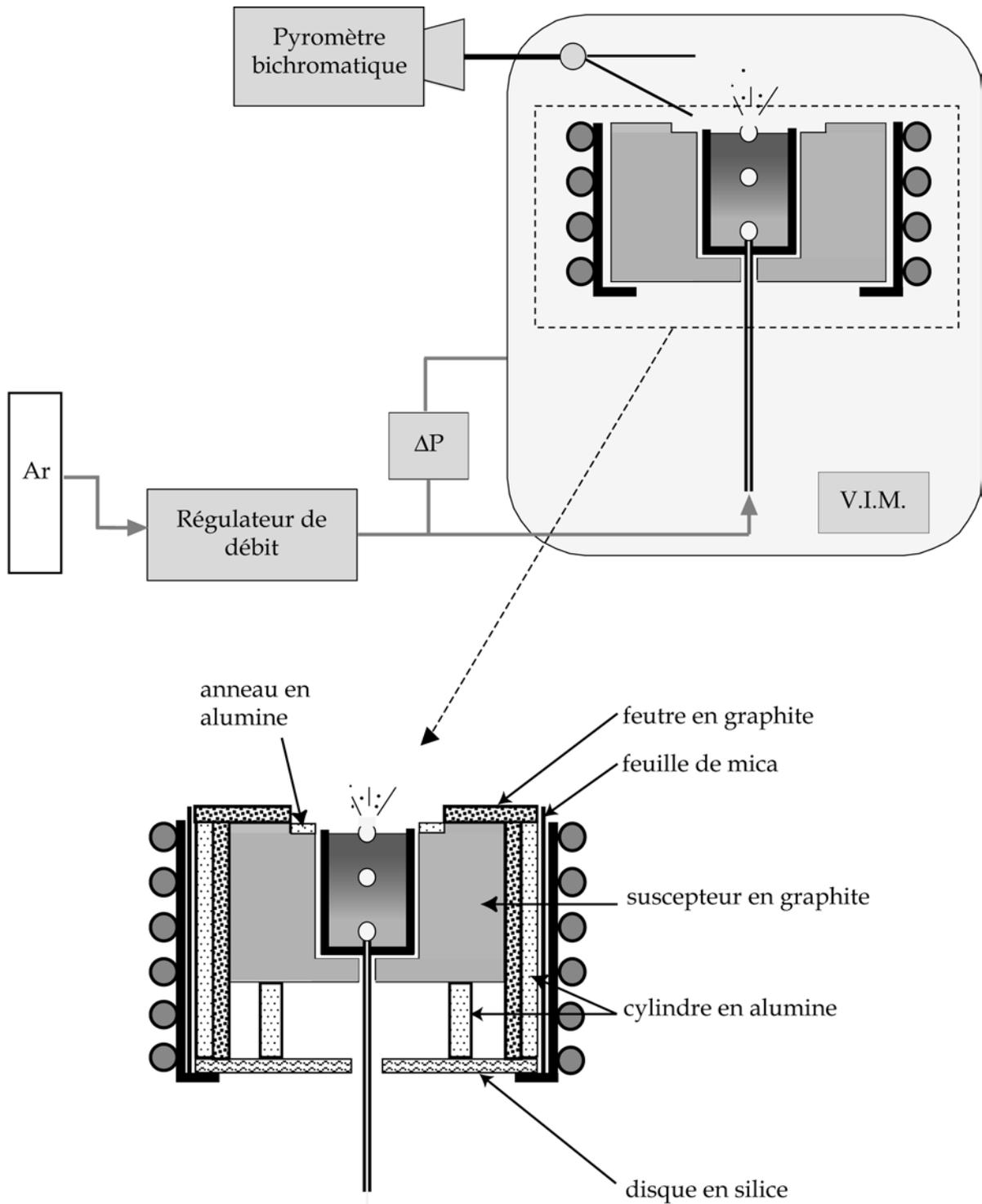


Figure 3.33 : Schéma de principe du dispositif de fusion

### Composition de la charge

Plusieurs types d'essais ont été réalisés à l'aide de ce dispositif :

- des essais utilisant un acier classique de type XC 38, dont la composition est donnée dans le tableau 3.6,
- des essais avec un acier riche en soufre afin de déterminer l'effet des tensioactifs sur l'éclatement des bulles,
- des essais avec une couche de laitier recouvrant le bain d'acier.

**Tableau 3.6 :** Composition de l'acier XC 38 (% massique)

C	Si	S	P	Mn	Cr	Ni	Mo	Cu	Al tot	N
0,36	0,27	0,012	0,015	0,58	0,08	0,05	0,02	0,12	0,004	0,007

Le bain d'acier riche en soufre est obtenu en ajoutant en début de fusion une petite charge (environ 3 grammes) de sulfure de fer contenant 30% de soufre (teneur exprimée en pourcentage massique) à une charge d'acier classique (XC 38). Une petite partie du soufre se volatilise lors de la montée en température. Pour déterminer la quantité restante dans le bain liquide, des prélèvements sont effectués sur le métal refroidi et analysés par spectroscopie infrarouge. Les teneurs obtenues sont généralement comprises entre 0,2 et 0,3 % en masse.

Pour obtenir une couche de laitier liquide recouvrant le bain métallique, on ajoute en début de fusion un mélange d'oxydes de type LDSF couramment utilisé au four électrique à arc. La réalisation pratique des essais avec laitier s'est avérée extrêmement délicate pour différentes raisons dont la première est l'existence de forts gradients thermiques entre le haut et le bas du creuset qui gênent la fusion du laitier. La deuxième est liée à la forme physique du laitier, commercialisé sous forme pulvérulente, qui génère, lors de la fusion au four VIM, des problèmes de moussage et de débordement du laitier. Enfin, nous avons rencontré des difficultés liées aux réactions qui se produisent aux interfaces (laitier/creuset, laitier/acier). Ainsi, le laitier a tendance à s'enrichir en alumine au cours de la fusion en réagissant avec le creuset ; ce phénomène entraîne d'une part une augmentation de la température de fusion et de la viscosité du laitier et d'autre part un amincissement des parois du creuset et donc une fragilisation de ce dernier. Le silicium présent dans le métal tend également à s'oxyder pour former des précipités qui donnent une consistance pâteuse au laitier et gênent l'éclatement des bulles. Si les réactions entre le creuset et le laitier et l'existence des gradients thermiques sont inévitables, en revanche, il est possible de remédier à certaines des difficultés citées précédemment. Ainsi, le mélange d'oxydes a été préfondu et coulé sur plaque à l'IRSID afin d'obtenir un composé compact qui ne mousse pas et ne déborde pas lors de son utilisation au VIM. Pour éviter la formation de précipités, l'acier XC38 a été remplacé par un acier bas carbone dont la teneur en silicium est presque nulle. Enfin la hauteur du susceptible a été augmentée, de façon à améliorer les transferts de chaleur du susceptible vers le creuset et la charge. En dépit de ces modifications, la fusion du laitier reste encore très imparfaite. Le dispositif dans sa configuration actuelle permet d'obtenir une petite couche de laitier parfaitement liquide uniquement sur la partie centrale du bain et seulement lors des

premières minutes qui suivent la fin de la fusion de la charge. Après quelques instants, le laitier se solidifie complètement et il devient impossible de le fondre à nouveau. En dépit de ces difficultés, nous sommes parvenu à effectuer quelques mesures qui nous ont permis d'étudier l'influence du laitier sur l'éclatement des bulles.

### Géométrie de la charge

Dans un tel dispositif, le chauffage se fait essentiellement par le bas du creuset ce qui provoque de forts gradients thermiques entre la partie supérieure et la partie inférieure de la charge. Au cours de la fusion, la partie supérieure de la charge encore « froide » et solide descend par à-coups successifs dans le métal fondu, ce qui peut entraîner une détérioration du système de bullage. Pour éviter ce phénomène, la charge doit être usinée selon une géométrie particulière mise au point par Huber (2000). Elle prend alors la forme d'un cylindre creux aux parois assez fines. La hauteur de la charge, qui dépasse celle du creuset, dépend du type d'essais réalisés : avec ou sans laitier (voir figure 3.34).

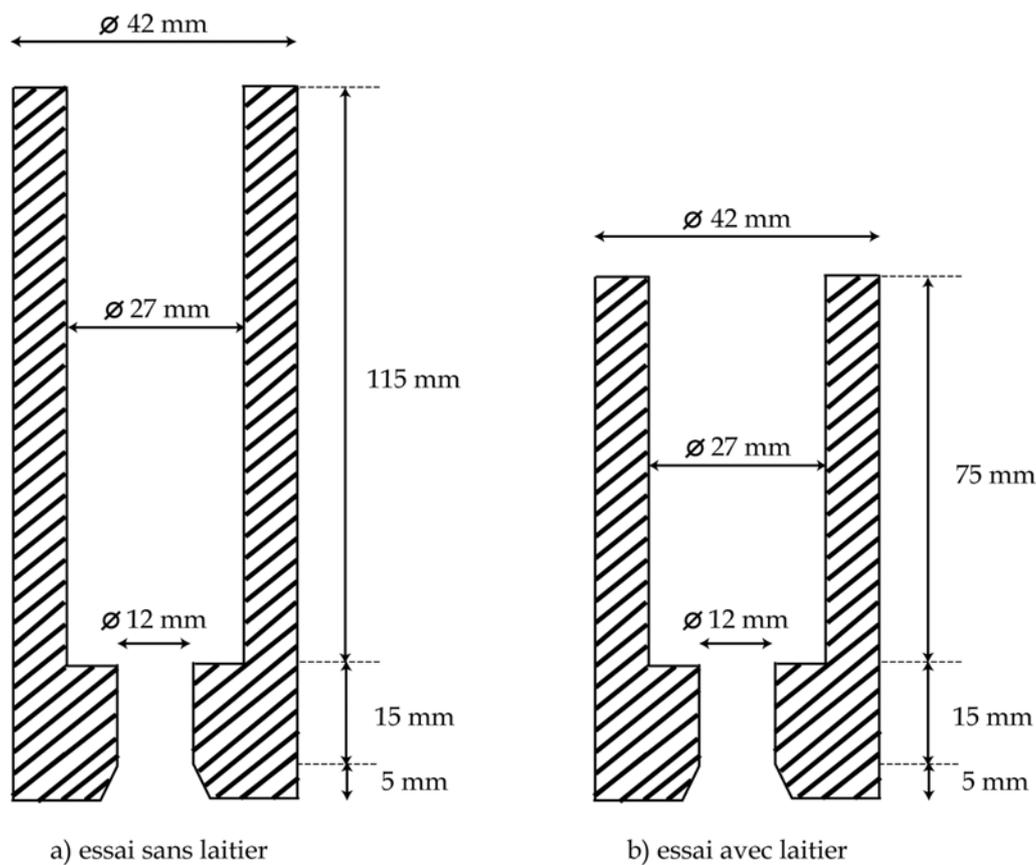


Figure 3.34 : Géométrie de la charge

### III.3.2. Le dispositif de bullage

#### *Spécifications du montage*

Le dispositif de bullage doit permettre de générer dans l'acier liquide des bulles gazeuses individualisées, de diamètre contrôlé mais que l'on peut faire varier d'un essai à l'autre, avec une fréquence régulière. Ces impératifs nous ont conduit à adopter un système de bullage par capillaire. D'autres méthodes, comme le bullage à travers un bouchon poreux ou par mise en œuvre d'une réaction au sein du bain (comme la décarburation), ont été écartées car mal adaptées à la production de bulles régulières qui puissent être étudiées individuellement.

Pour mettre au point notre dispositif de bullage, nous avons tout d'abord repris le montage expérimental d'Huber (2000) dont le principe est un bullage au moyen d'un capillaire traversant le fond du creuset, puis nous l'avons adapté et modifié sur plusieurs plans afin de le rendre plus robuste et surtout de produire des bulles plus petites.

La gamme de taille probable des bulles de CO dans un four électrique à arc (cf. § II.2.) va de 2 à 20 mm, c'est donc cet intervalle de diamètre de bulle qu'il convient d'étudier. Les bulles du montage d'Huber ont des tailles comprises entre 7,4 et 12 mm. La taille de bulle critique en dessous de laquelle aucune goutte de film ne se formerait d'après le critère de Spiel est d'environ 4,5 mm. Nous avons donc cherché le moyen de produire des bulles de diamètre inférieur à cette valeur.

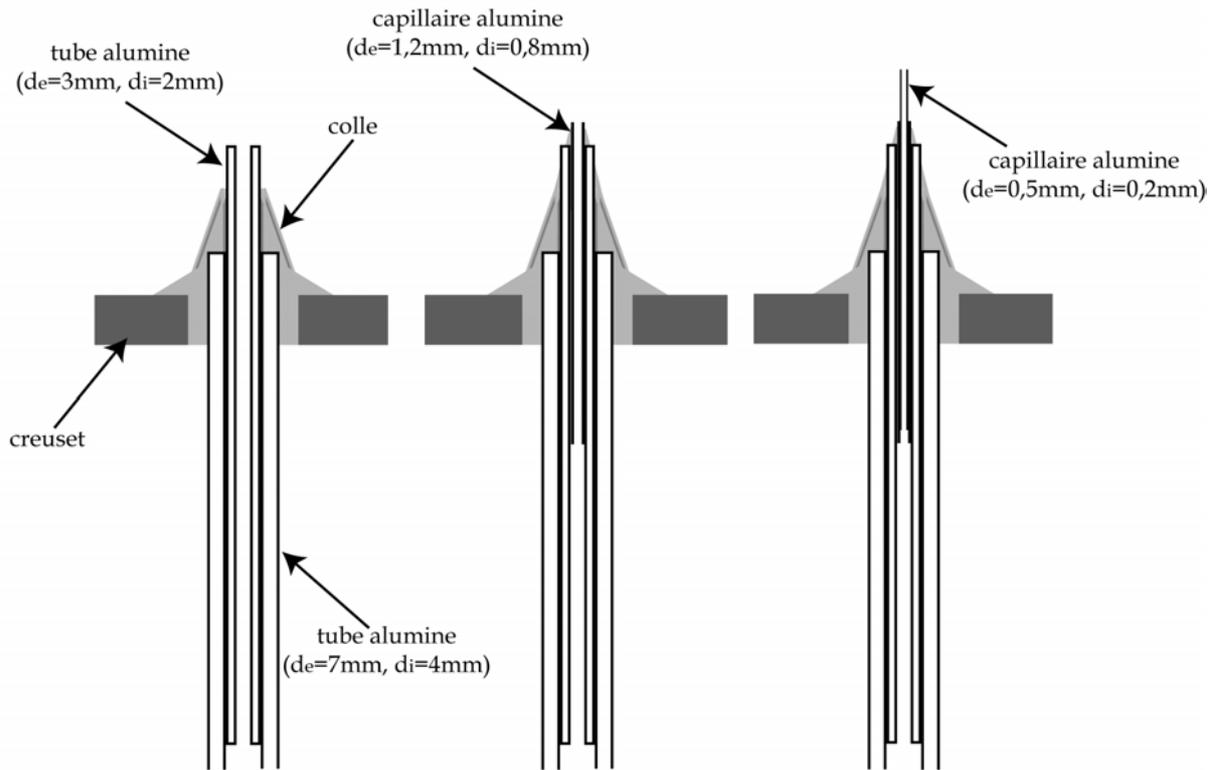
Une étude bibliographique préalable ainsi que des essais expérimentaux sur maquette à eau ont été menés afin de déterminer les paramètres influençant la taille des bulles formées à partir d'un orifice rigide immergé dans un liquide au repos. Les résultats de cette étude, détaillés en annexe A, montrent que pour obtenir des bulles de petite taille, il est nécessaire de minimiser trois paramètres :

- la taille du capillaire,
- le volume de chambre (volume de gaz situé entre la vanne de contrôle du débit et l'orifice immergé),
- le débit de gaz.

#### *Système de bullage au VIM*

A partir des données précédentes, nous avons mis au point un dispositif de bullage destiné à couvrir une gamme de taille relativement large, correspondant à celle obtenue au four électrique à arc. Le gaz (argon) est injecté par le fond du creuset. Le système d'injection est constitué d'un premier tube en alumine ( $d_e = 7$  mm,  $d_i = 4$  mm,  $L = 300$  mm) qui traverse l'ensemble du système inducteur + suscepteur. L'extrémité inférieure du tube d'injection est raccordée par un système de vissage à un tube en inox ( $d_e = 3$  mm), relié à l'extérieur du four à un système de régulation du débit et à l'alimentation en argon (bouteille d'argon

comprimé). Un collage (colle réfractaire à base alumine 903 HP, fabriquée par Cotronics Corp., fournisseur Final Matériaux Avancés), assure la fixation de l'extrémité supérieure du tube au creuset. Enfin, un ou plusieurs tubes en alumine, de plus en plus fins ( $d_e = 3 \text{ mm} / d_i = 2 \text{ mm}$ ,  $d_e = 1,2 \text{ mm} / d_i = 0,8 \text{ mm}$ ,  $d_e = 0,5 \text{ mm} / d_i = 0,2 \text{ mm}$ ), y sont successivement insérés et collés (voir figure 3.35). Les bulles se détachent à l'extrémité du dernier tube en alumine.

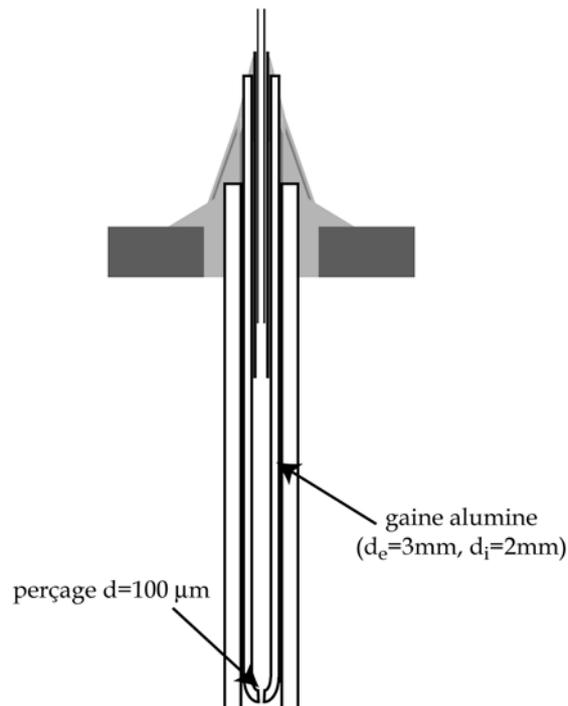


**Figure 3.35 :** Détails du dispositif d'injection

L'injection de gaz est contrôlée par deux régulateurs de débit massique montés en parallèle. Le premier a une capacité maximale de  $10 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$  et le second une capacité maximale de  $5 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$ . Nous pouvons donc faire varier le débit de  $0$  à  $15 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$  à l'entrée du système d'injection, soit un débit maximal d'environ  $106 \text{ cm}^3 \text{ min}^{-1}$  à l'extrémité du capillaire (en considérant une température de  $1650^\circ\text{C}$  dans le bain d'acier liquide). Deux systèmes ont été testés afin de déterminer la fréquence de bullage : la détection du départ de la bulle grâce à un capteur de pression différentielle et la visualisation de l'arrivée de la bulle à la surface du bain. Le capteur de pression différentiel ( $0-100 \text{ mbar}$ ), installé entre l'enceinte du four et le tube d'injection, détecte les variations de pression liées à la croissance de la bulle à l'extrémité du capillaire (augmentation de la pression dans le tube d'injection) puis à son détachement (chute de pression dans le capillaire). En pratique, cette mesure nécessite un filtrage du signal ( $1 \text{ Hz}$ ) et se révèle surtout adaptée à la détection de grosses bulles ( $d_B > 12 \text{ mm}$ ) pour lesquelles l'amplitude du signal est plus grande et la période de bullage suffisamment longue. En effet, lors du détachement d'une bulle, on constate que la chute de pression dans le tube d'injection s'étend sur une période d'environ  $0,3$  à  $0,5 \text{ s}$ . Si la période de bullage est courte, ce qui est le cas pour les bulles que nous obtenons à partir de ce

dispositif, il y a interférence entre l'augmentation de pression provoquée par la croissance d'une bulle et la chute de pression provoquée par le détachement de la bulle précédente. Il devient alors rapidement difficile de distinguer les bulles les unes des autres. Nous avons donc préféré exploiter la visualisation par vidéo rapide des bulles à la surface du bain qui permet de calculer la fréquence de bullage en mesurant l'intervalle de temps qui sépare l'arrivée de deux bulles consécutives à la surface du liquide. Cette approche suppose que la vitesse d'ascension des bulles est sensiblement identique au cours d'une séquence vidéo, puisqu'on ne mesure pas la fréquence de détachement du capillaire, mais la fréquence d'arrivée à la surface. Cette hypothèse est validée a posteriori par la très grande régularité du bullage et donc de la taille des bulles.

Avec de tels capillaires (0,5 mm, 1,2 mm et 3 mm), la loi de Tate (voir annexe A) prévoit que le diamètre équivalent en volume des bulles devrait être respectivement de 4 mm, 5,4 mm et 7,4 mm. Dans la pratique, les bulles obtenues ont une taille comprise entre 7 mm et 12 mm. Plusieurs éléments peuvent expliquer cet écart entre la réalité et la théorie. Tout d'abord, les capillaires en alumine que nous utilisons sont extrêmement fragiles et il arrive fréquemment que ceux-ci cassent au-cours de la fusion. Or, l'état de surface de l'orifice du capillaire est un paramètre extrêmement important pour la formation des bulles. Un orifice présentant des irrégularités de surface entraînera le détachement de bulles plus grosses que celles obtenues à partir d'un orifice parfaitement plan. Par ailleurs, un tel montage génère un volume de chambre non négligeable que nous avons cherché à limiter afin d'obtenir des bulles plus fines. Pour y parvenir, une perte de charge importante a été introduite dans le système, par l'intermédiaire d'une gaine percée finement à son extrémité (diamètre du trou : 100  $\mu\text{m}$ ). Cette gaine, qui fait office de vanne, est insérée avant les capillaires, et se substitue au tube de diamètre extérieur 3 mm (voir figure 3.36). Un tel dispositif nous permet d'obtenir des bulles dont la taille varie entre 4 mm et 8 mm. Nous disposons donc d'un système de bullage couvrant une gamme de taille de bulles comprise entre 4 mm et 12 mm, ce qui correspond aux ordres de grandeur estimés au four électrique à arc.



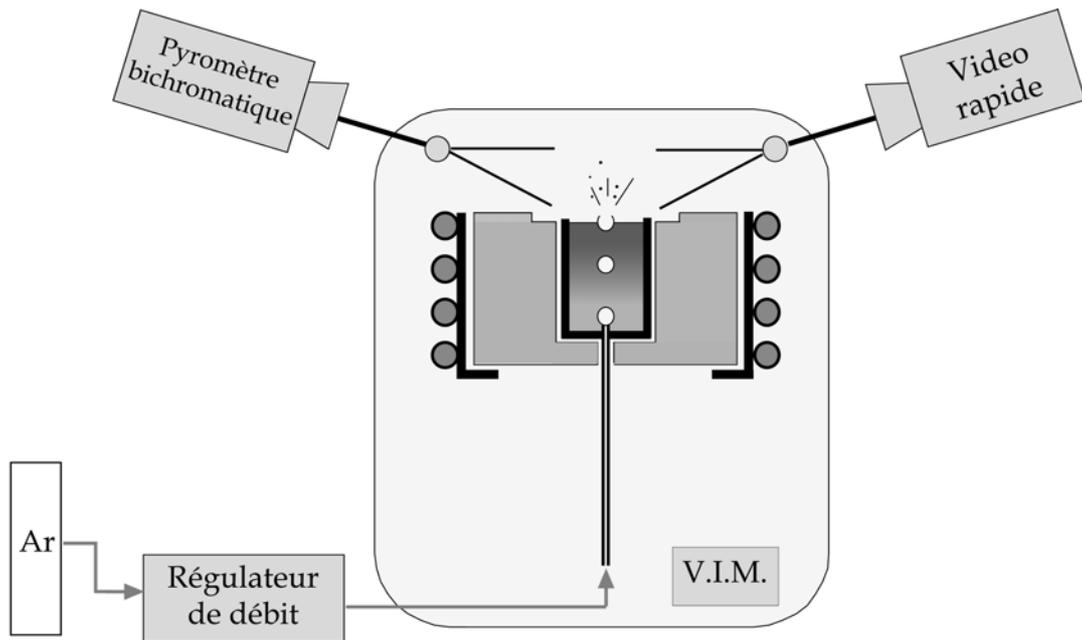
**Figure 3.36 :** Détail du dispositif d'injection avec perte de charge

### III.3.3. Le dispositif de mesure

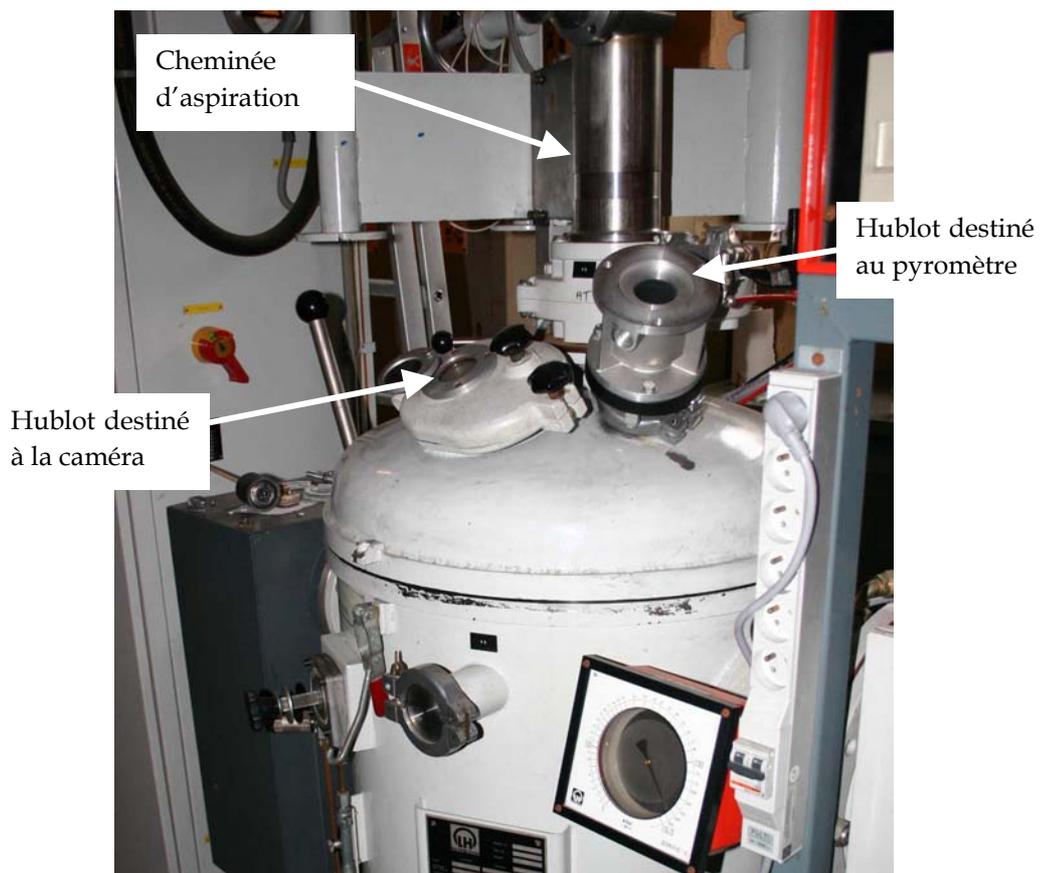
#### *Les techniques de visualisation*

La visualisation par vidéo rapide est un des outils de base de notre étude expérimentale. Comme nous l'avons mentionné précédemment, cette technique est utilisée afin de mesurer la fréquence de bullage et ainsi calculer la taille des bulles. Par ailleurs, l'acquisition des images lors de l'éclatement d'une bulle à la surface du bain permet également de mieux comprendre les différentes étapes de ce phénomène (rupture du film, formation du jet et détachement des gouttes de jet) et de quantifier la formation des gouttes de jet.

La visualisation se fait à travers un hublot du four avec un zoom de type 12,5 - 75 mm. La ligne de visée forme un angle de 53° avec le plan horizontal (figure 3.37 et 3.38).



**Figure 3.37 :** Schéma du dispositif expérimental, visualisation de l'éclatement des bulles à l'aide d'une caméra vidéo rapide



**Figure 3.38 :** Four VIM utilisé pour les essais expérimentaux

La majorité des essais ont été filmés avec une caméra vidéo rapide analogique Kodak Motion Corder SR-Ultra Couleur, équipée d'un capteur CCD. Cet appareil enregistre des images à une fréquence comprise entre 50 et 10000 images par seconde. La résolution des images tout comme la longueur de la séquence dépend de la fréquence d'acquisition :

- 512 × 480 pixels et 2184 images acquises pour une fréquence inférieure ou égale à 250 images par seconde,
- 512 × 240 pixels et 4368 images acquises à 500 images par seconde,
- 256 × 240 pixels et 8738 images acquises à 1000 images par seconde,
- 128 × 80 pixels et 52428 images acquises à 5000 images par seconde,
- 128 × 34 pixels et 123360 images acquises à 10000 images par seconde.

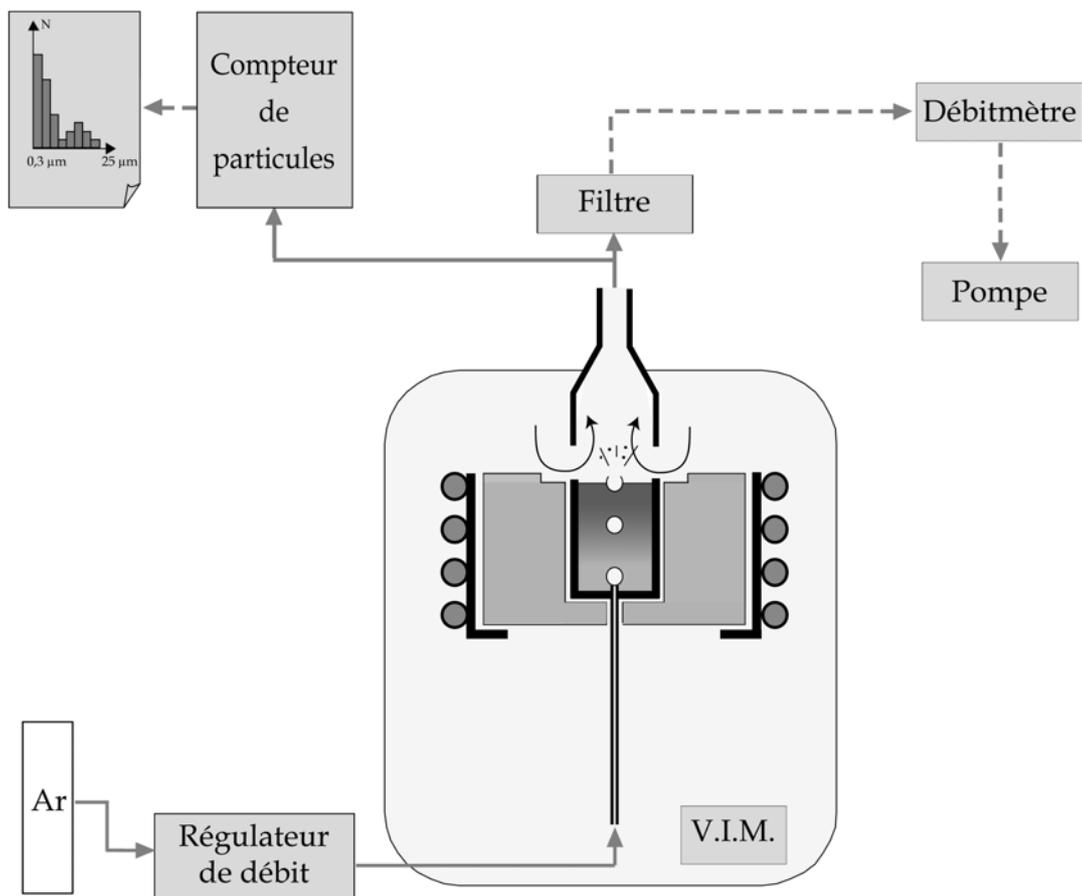
Afin d'assurer le meilleur compromis entre la vitesse du phénomène et la résolution des images, nous avons travaillé principalement dans deux configurations :

- 1000 images par seconde, temps d'obturation de 1/10000<sup>ème</sup> seconde, 8738 images acquises soit une séquence d'une durée de 8,7 s. Ces conditions sont adaptées pour déterminer la fréquence de bullage ainsi que pour observer les différentes étapes de la formation du jet et quantifier les gouttes de jet.
- 5000 images par seconde, temps d'obturation de 1/20000<sup>ème</sup> seconde, 52428 images acquises soit une séquence d'une durée de 10,5 s. Ces conditions ont été utilisées pour visualiser la rupture du film liquide. La faible résolution des images obtenues à cette fréquence d'acquisition ne permet pas de voir les particules les plus fines (gouttes de film).

Nous avons également filmé quelques essais à l'aide d'une caméra numérique Phantom V5 noir et blanc, équipée d'un capteur CMOS, que le LSG2M a acquise en février 2004. La fréquence d'enregistrement maximale de cette caméra atteint 93000 images par seconde et la qualité des images est nettement supérieure à celle obtenue avec la caméra Kodak.

### *Le dispositif de captage des particules fines*

Comme mentionné précédemment, les particules fines issues de la rupture du film recouvrant la bulle ne peuvent être étudiées à partir des images obtenues par vidéo rapide. Pour les caractériser, nous avons mis en place un système d'aspiration placé à 2 cm du creuset pour capter l'aérosol fin qui se forme au-dessus du bain. Les particules sont ensuite recueillies sur un filtre ou caractérisées en ligne par un compteur de particules (voir figure 3.39).

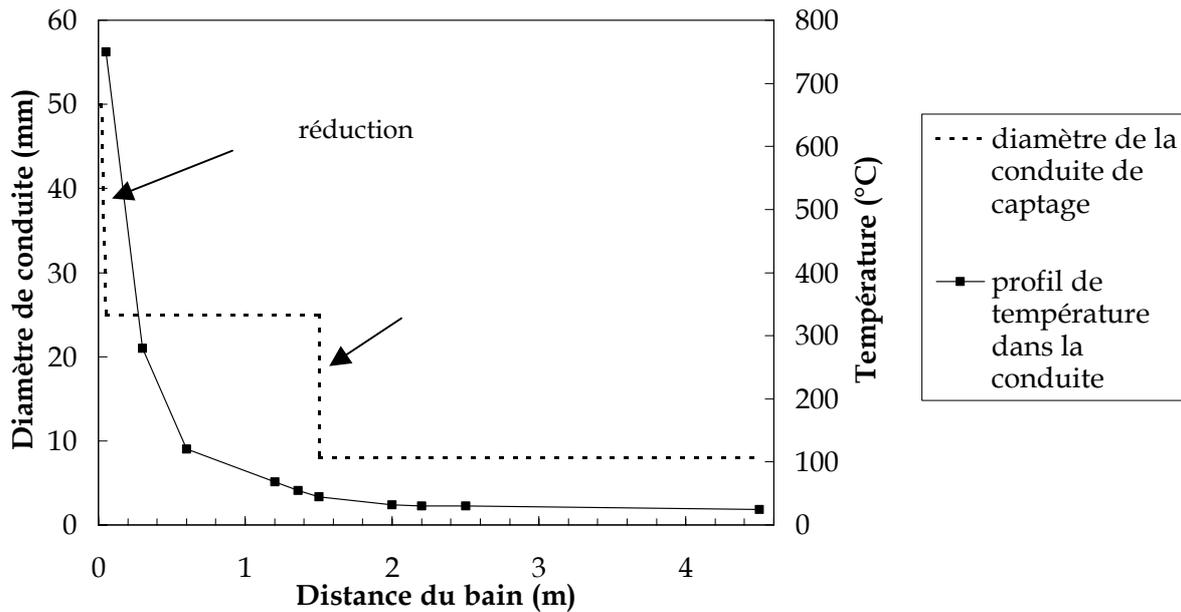


**Figure 3.39** : Schéma du dispositif expérimental, aspiration des particules fines

### Le système d'aspiration

Le dispositif d'aspiration des particules est constitué d'un tube (diamètre intérieur : 25 mm, longueur : 1 m) monté sur crémaillère et relié au système de recueil des particules (porte-filtre ou compteur de particules) et à une pompe. Un embout conique (diamètre intérieur maximal : 50 mm, diamètre intérieur minimal : 25 mm) prolongé par un cylindre de diamètre intérieur 50 mm est adapté à la base du tube pour que le système d'aspiration recouvre la surface du creuset (voir figure 3.39).

Quel que soit le dispositif de recueil des particules utilisé, le débit d'aspiration imposé par la pompe en sortie du captage est de  $28,3 \text{ L min}^{-1}$ . Des mesures de température ont été réalisées à l'intérieur de la conduite afin de pouvoir déterminer le débit et la vitesse du gaz en chaque point du captage. La figure 3.40 montre les résultats obtenus pour un bain à  $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ .



**Figure 3.40 :** Profil de température à l'intérieur de la conduite de captage lors d'une aspiration au-dessus d'un bain d'acier à 1600 °C

Au-dessus du bain, la température du gaz est de 750 °C puis décroît pour atteindre la température atmosphérique à la sortie du tube. A l'entrée du tube, la vitesse du gaz est de 0,84 m s<sup>-1</sup> tandis qu'à la sortie du four elle est de 0,96 m s<sup>-1</sup> en raison de l'effet combiné de la baisse de la température et du rétrécissement du tube. La vitesse terminale de chute d'une sphère solide en régime de Stokes est donnée par la relation.

$$U_s = \frac{(\rho_p - \rho_{\text{gaz}}) g d_p^2}{18 \mu_{\text{gaz}}} \quad (3.30)$$

avec :  $U_s$  vitesse terminale de chute dans le régime de Stokes (m s<sup>-1</sup>)

Le calcul montre alors que les plus grosses particules théoriquement aspirées par le dispositif ont un diamètre de 90 µm. Dans un four électrique, en supposant que le débit de CO mesuré à la sortie du four provient uniquement du bain et qu'il est uniformément réparti sur la surface du four, on peut estimer une vitesse verticale de CO à 1800 K de l'ordre de 0,2 m s<sup>-1</sup> en période de décarburation. Les particules transportées par le flux gazeux ont alors une taille théorique maximale de 60 µm. Nous employons donc des conditions d'aspiration similaires à celles qui peuvent être imaginées pour l'envol des particules à proximité du bain d'un four électrique. Cette approche ne fait pas cas des entrées d'air ou de l'effet de l'arc électrique qui peuvent entraîner localement des vitesses plus importantes. Quoi qu'il en soit, le diamètre maximal théorique de 90 µm pour les particules aspirées par notre dispositif est nettement supérieur à celui des poussières de four électrique.

## La caractérisation des particules en ligne

Un compteur de particules (modèle APC 300 de Malvern Instruments), relié à la cheminée d'aspiration par un tube en téflon afin d'éviter les dépôts de particules sur les parois, est le premier système de caractérisation des particules que nous ayons employé. Cet instrument, dont le principe de mesure repose sur la diffraction d'un faisceau laser par les particules qui le traversent, permet de déterminer in situ le nombre et la taille des particules aspirées. Il couvre une gamme de taille comprise entre 0,3  $\mu\text{m}$  et 25  $\mu\text{m}$ , divisée en 8 intervalles de mesure. Malheureusement, nous n'avons pu réaliser que quelques mesures à l'aide de ce système. En raison d'une panne, qu'il n'a pas été possible de réparer, nous avons dû mettre au point un autre dispositif, dans lequel les particules fines sont prélevées sur un filtre et caractérisées ultérieurement.

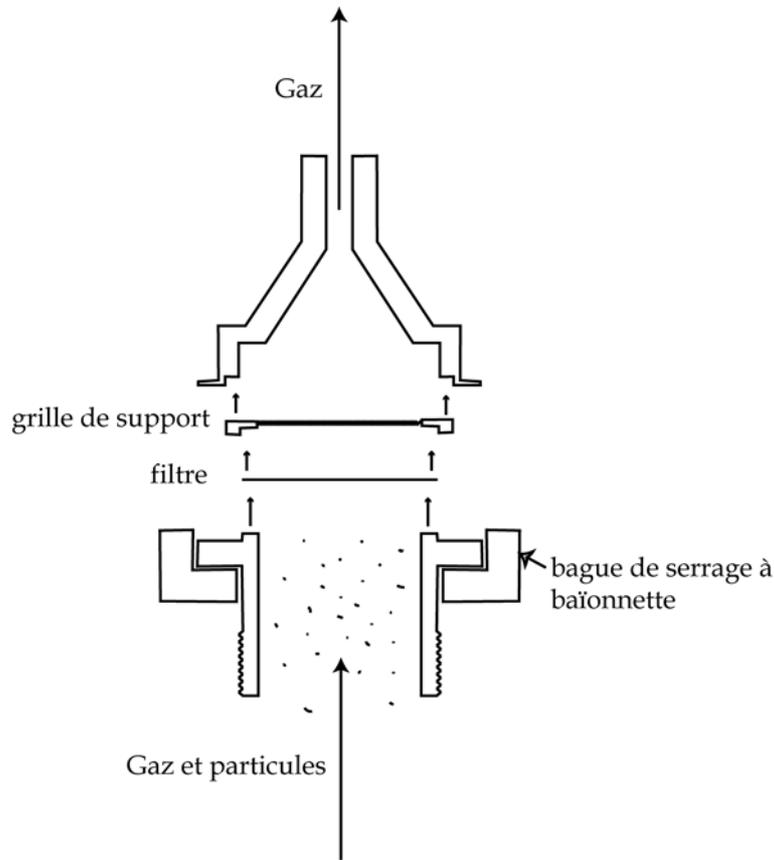
## Le recueil des particules sur filtre

Deux systèmes de recueil des particules sur filtre ont été utilisés : le premier est destiné à recueillir de petites quantités de particules sur une durée très courte, nous l'appellerons montage I ; le second permet de capter de grandes quantités de particules sur une durée relativement longue, sans risque de colmatage du filtre, nous l'appellerons montage II. L'un et l'autre sont installés en sortie du tube d'aspiration et sont reliés à un débitmètre et à une pompe par un tube flexible.

Les filtres utilisés dans le montage I ont un diamètre de 25 mm. Le porte-filtre en acier inoxydable a été conçu et réalisé spécifiquement pour cette étude sur les conseils d'O. Witschger du Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols de l'INRS. Le système de serrage à baïonnette permet de maintenir une bonne étanchéité du dispositif sans risque de dégradation du filtre (voir figure 3.41). Le porte-filtre est connecté au tube d'aspiration par un raccord DN25 standard. L'ensemble est facilement démontable, ce qui permet de changer rapidement les filtres lors des essais expérimentaux et donc d'effectuer plusieurs prélèvements au-cours d'une même fusion. Les filtres utilisés sont de deux types :

- des filtres en fibre de verre (marque Millipore, taille des pores : 0,8  $\mu\text{m}$ ) : ces filtres piègent les particules en profondeur et sont destinés à l'analyse gravimétrique ;
- des membranes en polycarbonate (marque Millipore, diamètre des pores : 0,4  $\mu\text{m}$ ) : ces filtres translucides permettent de recueillir les particules en surface afin de les caractériser par microscopie ou par granulométrie.

Le porte-filtre utilisé dans le montage II a été mis au point au Laboratoire de Physique des Matériaux (Ecole des Mines de Nancy) par Xavier Devaux pour de grandes surfaces de filtration (diamètre des filtres : 10 cm). D'un usage moins aisé que le précédent, il ne peut être démonté au cours d'une fusion et sert essentiellement à prélever de grandes quantités de particules qui seront ensuite analysées par diffraction des rayons X et caractérisées au microscope électronique à transmission ainsi que par la technique d'adsorption BET.



**Figure 3.41 :** Schéma de principe du porte-filtre utilisé dans le montage I (vue en coupe)

### III.3.4. Mode opératoire

#### *Synthèse du dispositif expérimental*

L'ensemble du dispositif expérimental mis en place pour cette étude est schématisé sur la figure 3.42. Ce montage permet de générer des bulles dans une petite charge d'acier liquide et de caractériser les particules issues de leur éclatement. La vidéo rapide permet d'étudier les différentes étapes de l'éclatement d'une bulle à la surface du bain et de quantifier la formation des gouttes de jet. Les gouttes de film plus fines sont aspirées par une cheminée et prélevées sur des filtres ou caractérisées in situ à l'aide d'un compteur de particules. Ce système permet également d'étudier l'influence des tensioactifs ou du laitier sur le phénomène d'éclatement. Par ailleurs un dispositif d'acquisition utilisant le logiciel Labview permet d'enregistrer l'évolution des paramètres opératoires (pression dans l'enceinte, pression dans le système de bullage, température du bain, débit de gaz dans le système d'injection, débit de gaz dans le système de captage) au cours d'un essai.

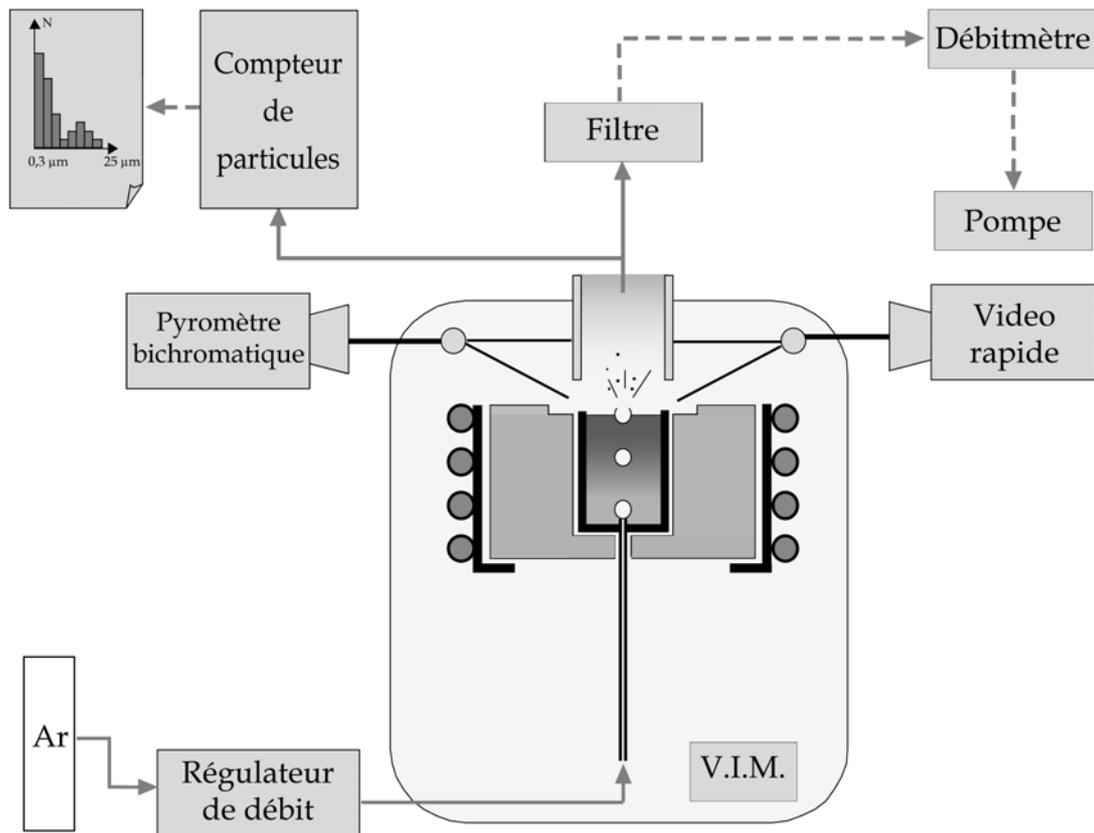
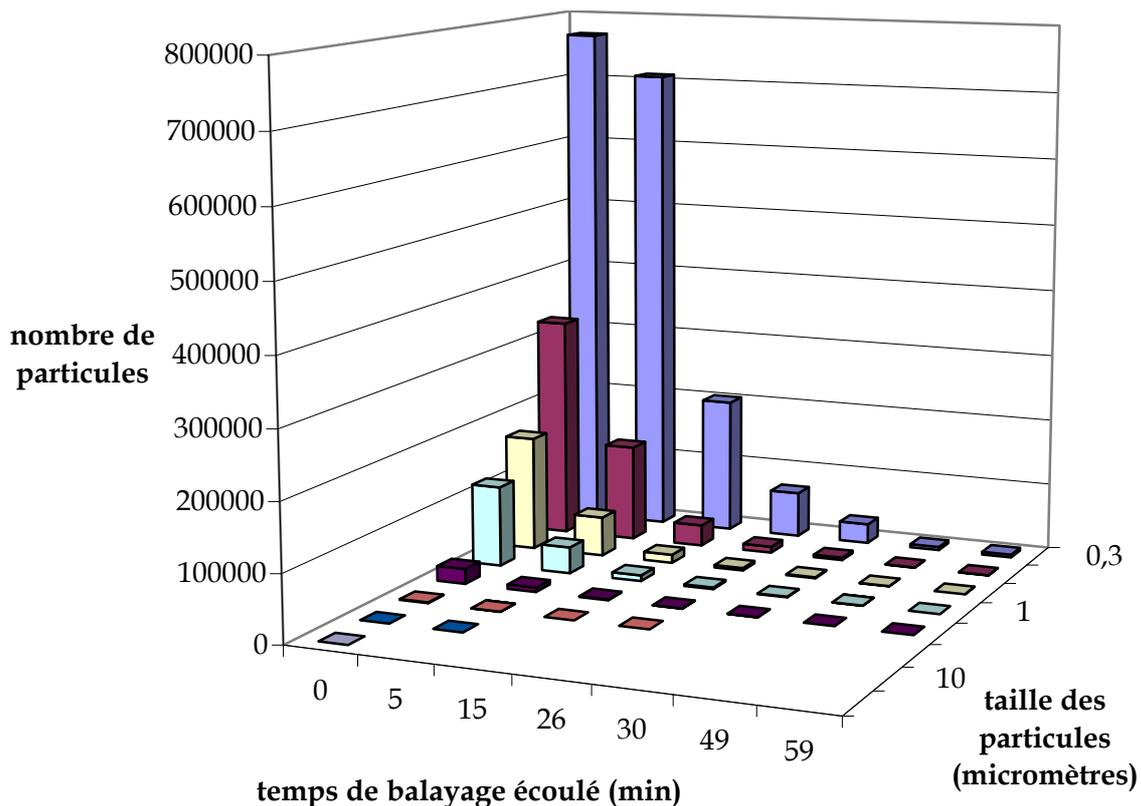


Figure 3.42 : Schéma de synthèse du dispositif expérimental

### *L'étape de fusion*

L'étape de fusion de la charge dure environ 2h30. Au préalable, le dispositif expérimental est mis sous vide ( $\sim 1$  Pa) afin d'éliminer toute trace d'oxygène et d'éviter des réactions d'oxydation avec l'acier ou le graphite chauds. Après 30 minutes de chauffage, on remplit rapidement l'enceinte avec de l'argon filtré. Par la suite, celle-ci reste constamment alimentée en argon à un débit de  $50 \text{ L min}^{-1}$  et maintenue à pression atmosphérique par un système de fuite.

Ce balayage assure la propreté de l'enceinte en évitant les entrées d'air et en éliminant les particules parasites présentes dans le four. Ces particules ne proviennent pas du métal mais correspondent soit à une « pollution » résiduelle apportée par l'air ambiant avant mise sous vide et remplissage du four, soit à des particules déposées sur les parois du four et remises en suspension lors de la mise sous vide. Pour fixer les ordres de grandeur, il est intéressant de savoir que la concentration en nombre des particules de plus de  $0,3 \mu\text{m}$  présentes dans l'air ambiant (local du four) est généralement comprise entre  $1 \cdot 10^6$  et  $1,5 \cdot 10^6$  particules pour 28,3 litres d'air. La figure 3.43 indique l'effet d'un balayage prolongé de l'enceinte par de l'argon filtré après mise sous vide et remplissage du four. Les concentrations ont été mesurées à l'aide du compteur de particules (APC 300), pendant l'étape de chauffage d'une charge d'acier XC 38.



**Figure 3.43 :** Effet d'un balayage prolongé de l'enceinte du four sur la quantité de particules parasites ; mesures effectuées lors de l'étape de chauffage d'une charge d'acier XC 38.

Les particules parasites sont progressivement éliminées. Les plus grosses sédimentent et se déposent sur le fond du four tandis que les particules submicroniques sont maintenues en suspension par mouvements browniens. Après une heure de balayage, il subsiste moins de 100 particules de plus de 0,3  $\mu\text{m}$  pour 28,3 litres d'air. Ces précautions opératoires assurent une propreté suffisante de l'atmosphère du four pour une détermination correcte des émissions provenant de la charge.

Lorsque la charge est entièrement fondue, on injecte de l'argon dans le système de bullage. Après une période de transition d'environ cinq minutes, la formation des bulles se stabilise et l'on obtient un bullage parfaitement régulier. Pendant toute la période d'acquisition des mesures, la température est maintenue à une valeur comprise entre 1600 et 1650  $^{\circ}\text{C}$  en ajustant la puissance fournie à la charge en fonction des mesures de température données par le pyromètre.

### *L'étape de prélèvement*

Les particules issues de la charge sont de deux natures : les unes proviennent de la vaporisation du métal en fusion, bien visible sous la forme de fumerolles s'échappant du creuset, les autres sont générées par l'éclatement des bulles à la surface du bain liquide. Pour

déterminer la contribution de chacun des phénomènes, il est donc nécessaire de procéder à des prélèvements avec et sans bullage, de manière consécutive. Seuls le compteur de particules APC 300 et le dispositif de prélèvement sur filtre utilisant le montage I (voir § II.2.1) permettent de mettre en œuvre un tel protocole. Dans ce cas, la durée de prélèvement est de 30 secondes, ce qui permet d'éviter les problèmes de colmatage des filtres, et l'intervalle séparant deux prélèvements d'environ 30 secondes également. Par ailleurs, une acquisition vidéo est réalisée après chaque prélèvement avec bullage, afin de déterminer la taille des bulles dont sont issues les particules aspirées.

Le dispositif d'aspiration utilisant le montage II (voir § II.2.1) ne permet pas de mettre en œuvre un tel protocole de prélèvement. En effet, le porte-filtre utilisé dans ce cas ne peut être démonté au cours de l'essai pour permettre le changement du filtre afin de procéder à un prélèvement dans de nouvelles conditions (avec ou sans bullage). Pour pouvoir différencier la contribution de la volatilisation de la charge de celle du bullage, il est donc nécessaire de réaliser deux essais expérimentaux, l'un avec bullage et l'autre sans bullage, dans les mêmes conditions opératoires et notamment avec un bain à température identique.

### **III.3.5. Méthodes de caractérisation des particules fines**

#### *Quantification des particules fines par analyse gravimétrique*

L'analyse gravimétrique consiste à déterminer précisément la masse de particules prélevées sur un filtre en fibre de verre. Les filtres sont pesés avant et après le prélèvement des particules ; la différence correspond à la masse prélevée, soit dans notre cas à la totalité des particules fines émises pendant la durée de prélèvement. A partir de ces mesures, on détermine la quantité de gouttes de film en soustrayant les résultats obtenus sans bullage aux résultats obtenus avec bullage. La pesée s'effectue à l'aide d'une balance Mettler dont la précision de mesure est de  $\pm 10 \mu\text{g}$ .

#### *Caractérisation de la morphologie des particules par microscopie*

La microscopie est une technique largement utilisée pour caractériser la morphologie et la composition de particules de toutes natures. La microscopie optique qui permet, en lumière polarisée, de distinguer et d'identifier les différentes phases minéralogiques grâce aux différences de couleur, a été exploitée intensivement par Hagni (1995) pour la caractérisation des poussières de four électrique. Cependant, cette technique issue de la géologie est limitée en grossissement ce qui nous a conduits à lui préférer la microscopie électronique.

Le MEB (microscope électronique à balayage) donne accès à l'observation de toutes les particules d'une taille supérieure au micromètre. De surcroît, cet outil est doté d'une profondeur de champ importante, particulièrement bien adaptée à la visualisation du relief

des particules. Il bénéficie également de possibilités d'analyses par EDS (Energy Dispersive Spectrometry) ; celles-ci sont qualitatives lorsque la zone étudiée n'est pas plane ou lorsque les particules sont plus petites que la zone sondée par le faisceau électronique (quelques  $\mu\text{m}^3$ ). Pour obtenir des résultats quantitatifs rigoureux, les particules observées doivent non seulement être suffisamment grandes mais également subir un traitement préalable : préparation de l'échantillon par imprégnation sous vide avec une résine, polissage et métallisation.

Les particules submicroniques, qui échappent au pouvoir de résolution du MEB, sont caractérisées par microscopie électronique en transmission (MET). Outre l'observation des particules, cet outil associe deux autres techniques de mesures : la microanalyse X, dont la résolution analytique est de l'ordre de 5 nm, et la microdiffraction électronique qui permet de vérifier la structure cristallographique des grains observés.

Ces deux techniques de caractérisation (MEB et MET) ont été associées afin de couvrir toute la gamme de taille des particules obtenues lors des essais expérimentaux. Chacune d'entre elles nécessite une préparation différente des échantillons.

Pour le MEB, la caractérisation des particules provenant d'un même filtre peut se faire de deux manières différentes. La première consiste à coller le filtre sur le porte-échantillon à l'aide d'une pastille adhésive en carbone ce qui permet d'observer la surface du « gâteau » de particules déposé sur le filtre ; les particules apparaissent alors agglomérées les unes aux autres. On peut également prélever une partie du « gâteau » à l'aide d'une pointe de couteau et l'étaler sur la pastille adhésive ou directement sur le porte-échantillon ; les particules sont alors partiellement désagglomérées ce qui permet de les caractériser individuellement. Quelle que soit la technique utilisée, les échantillons nécessitent une métallisation au carbone ou à l'or, après avoir été déposés sur le porte-échantillon. Le dépôt de carbone est conseillé si l'on veut procéder à des analyses alors que le dépôt d'or est plutôt utilisé en vue d'une caractérisation morphologique des particules.

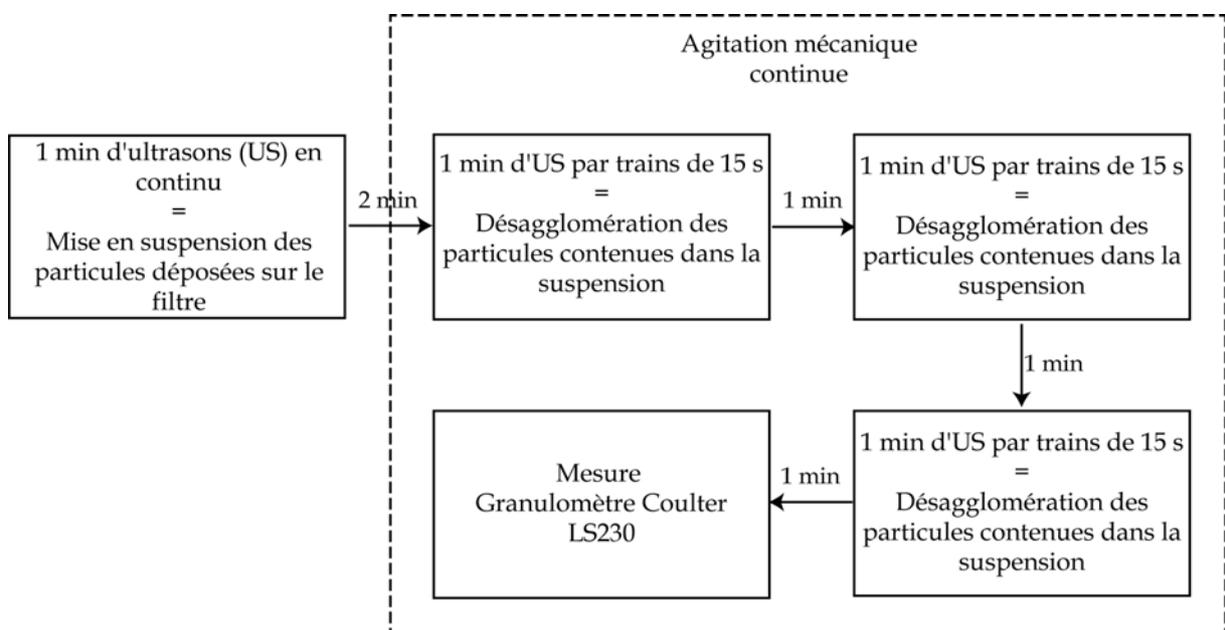
Dans le cadre d'une observation au MET, les particules sont mises en suspension dans une solution d'éthanol (98 %) et désagglomérées dans une cuve à ultrasons. Elles sont ensuite prélevées à l'aide d'une micro-pipette et déposées sur une grille de cuivre recouverte d'un film de carbone. Lorsque l'échantillon est sec, on peut alors l'introduire dans le MET et procéder aux observations et aux analyses.

### *Caractérisation de la granulométrie par diffraction laser*

La diffraction laser est une technique qui permet de déterminer la distribution en taille d'une population de particules contenues dans une poudre, une suspension ou un aérosol. Deux appareils de mesure mettant en œuvre cette technique ont été utilisés au cours de cette étude : le compteur de particule APC 300 et le granulomètre laser Coulter LS 230.

Le compteur de particules permet de déterminer en vol la distribution en nombre détaillée des particules contenues dans un aérosol (voir § II.2.3) et couvre une gamme de taille comprise entre 0,3 et 25  $\mu\text{m}$ .

Contrairement au compteur de particules, le granulomètre ne donne accès qu'à une distribution volumique relative des tailles de particules. Cependant, il permet de caractériser une population de particules de taille très variable, puisque sa gamme de mesure s'étend de 0,04 à 2000  $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, la mesure s'effectue en voie humide et nécessite la mise en suspension préalable des particules. Nous avons donc utilisé cet instrument afin de déterminer a posteriori la granulométrie des particules prélevées à l'aide de filtres. Plusieurs protocoles de préparation des échantillons ont été testés lors d'essais préliminaires, afin d'évaluer leur influence sur la désagglomération des particules. Le protocole retenu pour l'ensemble des mesures présentées dans cette étude est décrit dans la figure 3.44.



**Figure 3.44 :** Protocole opératoire utilisé pour la mise en suspension et la désagglomération des particules avant la mesure au granulomètre Coulter LS 230

Pour séparer les particules du filtre sur lequel elles ont été prélevées, celui-ci est plongé dans un Becher contenant une solution d'éthanol à 98% ; puis, l'ensemble est placé dans une cuve à ultrasons où il subit une première phase d'agitation (1 min). On obtient alors une suspension de particules partiellement désagglomérées. Une partie de la suspension est ensuite prélevée à l'aide d'une pipette et introduite dans la cellule de mesure où elle subit une agitation mécanique continue ainsi que trois phases d'agitation par ultrasons d'une minute chacune. On peut ensuite procéder à la mesure. Ce protocole permet d'obtenir une bonne reproductibilité des résultats sur les échantillons issus d'une même suspension et une désagglomération plus importante que celle générée par les autres protocoles que nous avons testés.

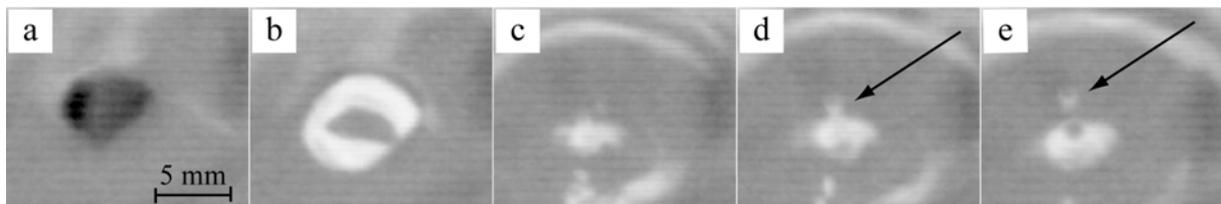
### *Autres méthodes de caractérisation*

D'autres méthodes de caractérisation des particules fines ont été utilisées de façon plus marginale, afin de compléter les résultats obtenus à partir des autres techniques. Ainsi, nous avons procédé à des mesures de surface spécifique à l'aide de la méthode BET. Cette technique, basée sur l'adsorption d'un gaz (krypton, azote...) à la surface des particules, nécessite une grande quantité de particules (équivalent au moins à une surface de 5 m<sup>2</sup>). A partir des résultats obtenus, on peut remonter à la taille moyenne des particules contenues dans l'échantillon analysé, en évitant les ambiguïtés de mesure liées aux techniques granulométriques (en raison par exemple de l'agglomération plus ou moins grande des particules). Des échantillons de particules issus d'essais sans bullage ont également été caractérisés par diffraction des rayons X, afin de déterminer les phases en présence.

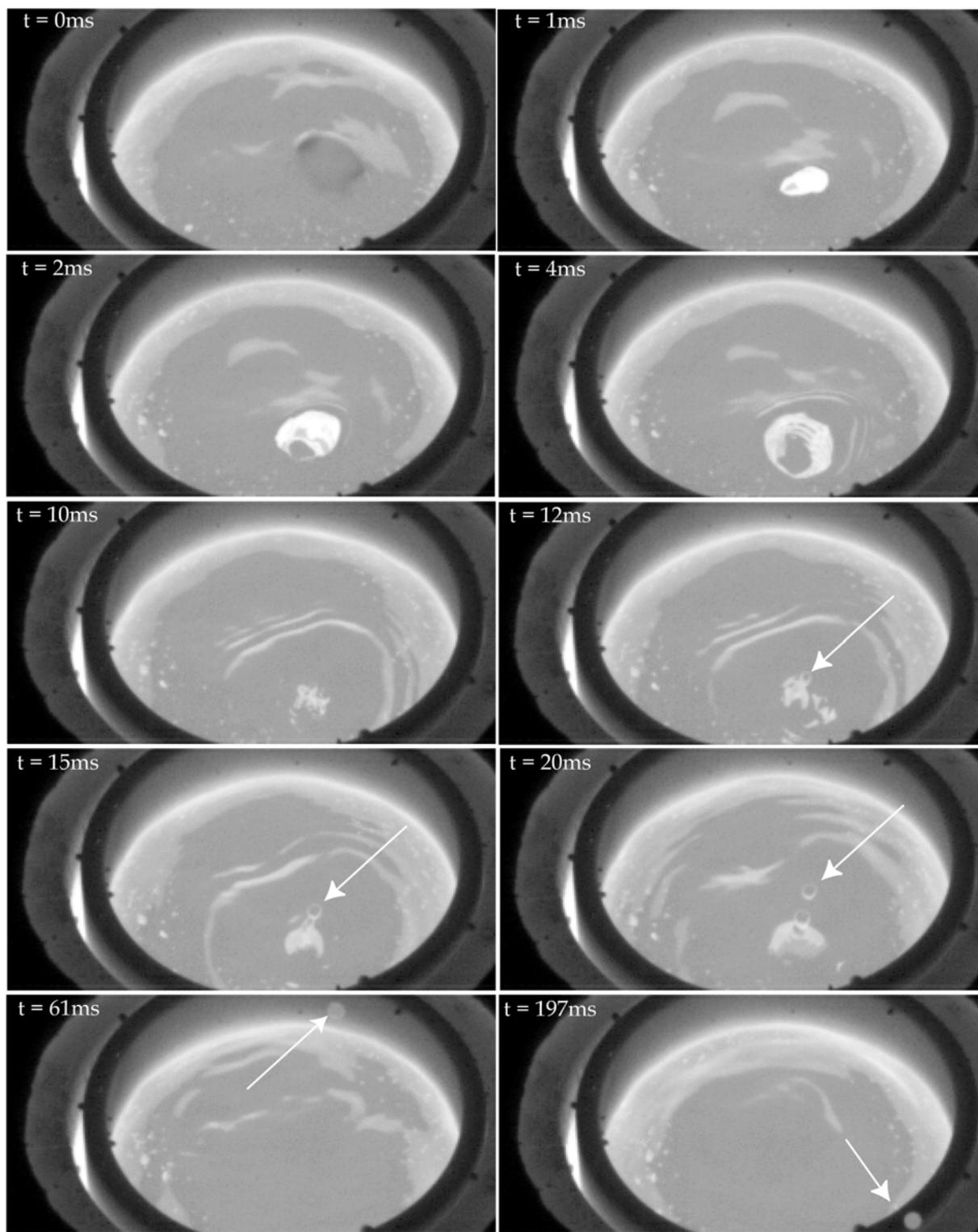
## III.4. RESULTATS EXPERIMENTAUX

### III.4.1. Visualisation du phénomène

Les images rassemblées sur les figures 3.44 et 3.45 ont été obtenues respectivement à l'aide des caméras rapides Kodak et Phantom. Les deux séquences vidéo ont été enregistrées à une fréquence de 1000 images par seconde, avec un temps d'obturation de 1/10000 s pour la figure 3.44 et de 1/100000 s pour la figure 3.45. Le film formé par la bulle arrivant à la surface de l'acier liquide apparaît en noir (1<sup>ère</sup> image) tandis que la cavité laissée par la bulle après la rupture du film apparaît en gris clair (2<sup>ème</sup> image). On observe également la formation d'un jet d'acier liquide d'où se détache une goutte de jet. La dernière image de la figure 3.45 montre la goutte de jet retombant à côté du creuset. On peut noter l'amélioration apportée par l'utilisation de la caméra Phantom quant à la qualité des images obtenues. D'autres images d'éclatement de bulles avec émission de gouttes de jet sont présentées en Annexe B1.



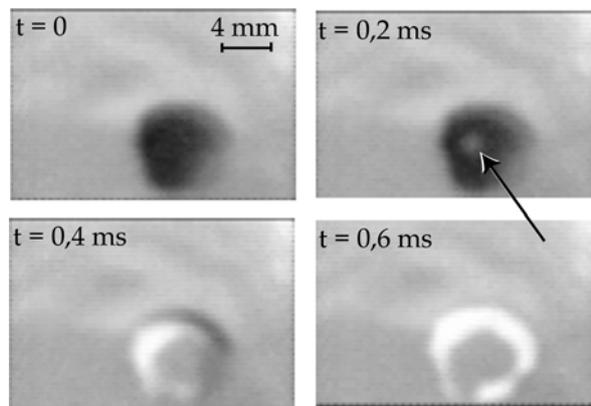
**Figure 3.44** : Eclatement d'une bulle à la surface de l'acier liquide et détachement d'une goutte de jet ; les images sont issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Kodak (vitesse d'acquisition : 1000 images/s)



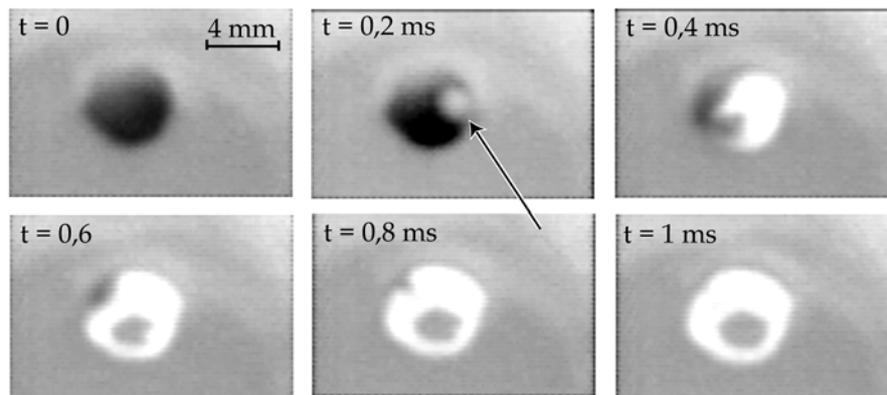
**Figure 3.45** : Eclatement d'une bulle à la surface de l'acier liquide et détachement d'une goutte de jet ; les images sont issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d'acquisition : 1000 images/s)

A cette vitesse d'acquisition, la formation des gouttes de jet est parfaitement discernable. En revanche, la rupture du film et la formation des gouttes de film ne sont pas accessibles, probablement en raison à la fois de la rapidité du phénomène et de la finesse des

gouttes de film. Malheureusement, comme sur toutes les caméras vidéo rapide, l'augmentation de la fréquence de prise de vue s'accompagne d'une réduction de la résolution des images. Le système Kodak Motion Corder permet de filmer l'éclatement des bulles à la surface de l'acier liquide à une fréquence maximale de 5000 images/s. Au-delà, la qualité et la taille de l'image ne sont pas satisfaisantes. Les figures 3.46 et 3.47 rassemblent des images issues de deux séquences vidéo filmées à 5000 images/s à l'aide de la caméra Kodak. La première image montre la bulle à la surface du bain avant la rupture du film. Sur la deuxième image, on constate la formation d'un trou dans le film. Celui-ci s'agrandit et se propage ensuite à toute la surface du film. On peut noter l'extrême rapidité du phénomène : en moins d'une milliseconde, le film a entièrement disparu.



**Figure 3.46 :** Rupture du film ; images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Kodak (vitesse d'acquisition : 5000 images/s, temps d'obturation : 1/20000 s)

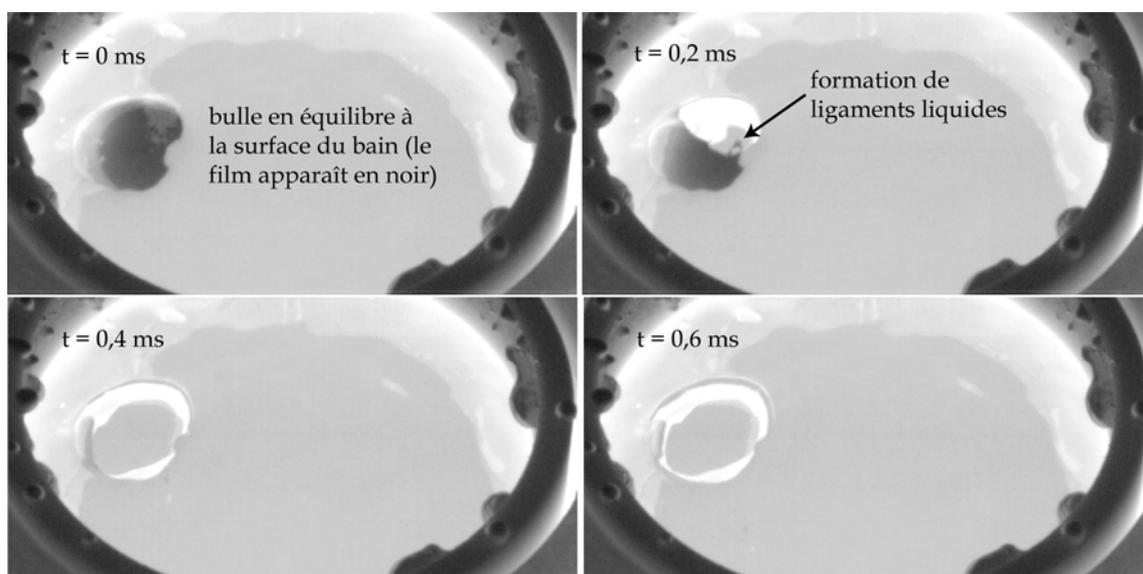


**Figure 3.47 :** Rupture du film ; images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Kodak (vitesse d'acquisition : 5000 images/s, temps d'obturation : 1/20000 s)

A cette vitesse d'acquisition, le champ d'observation est très petit, ce qui nécessite l'enregistrement de nombreuses séquences pour avoir la chance de saisir l'éclatement d'une bulle. Malgré ces difficultés, ce dispositif nous a permis de visualiser l'éclatement d'environ 150 bulles, avec des tailles variant de 4 à 12 mm. Quelle que soit la nature du bain liquide, la totalité des séquences enregistrées font apparaître un mode de rupture en un seul point du

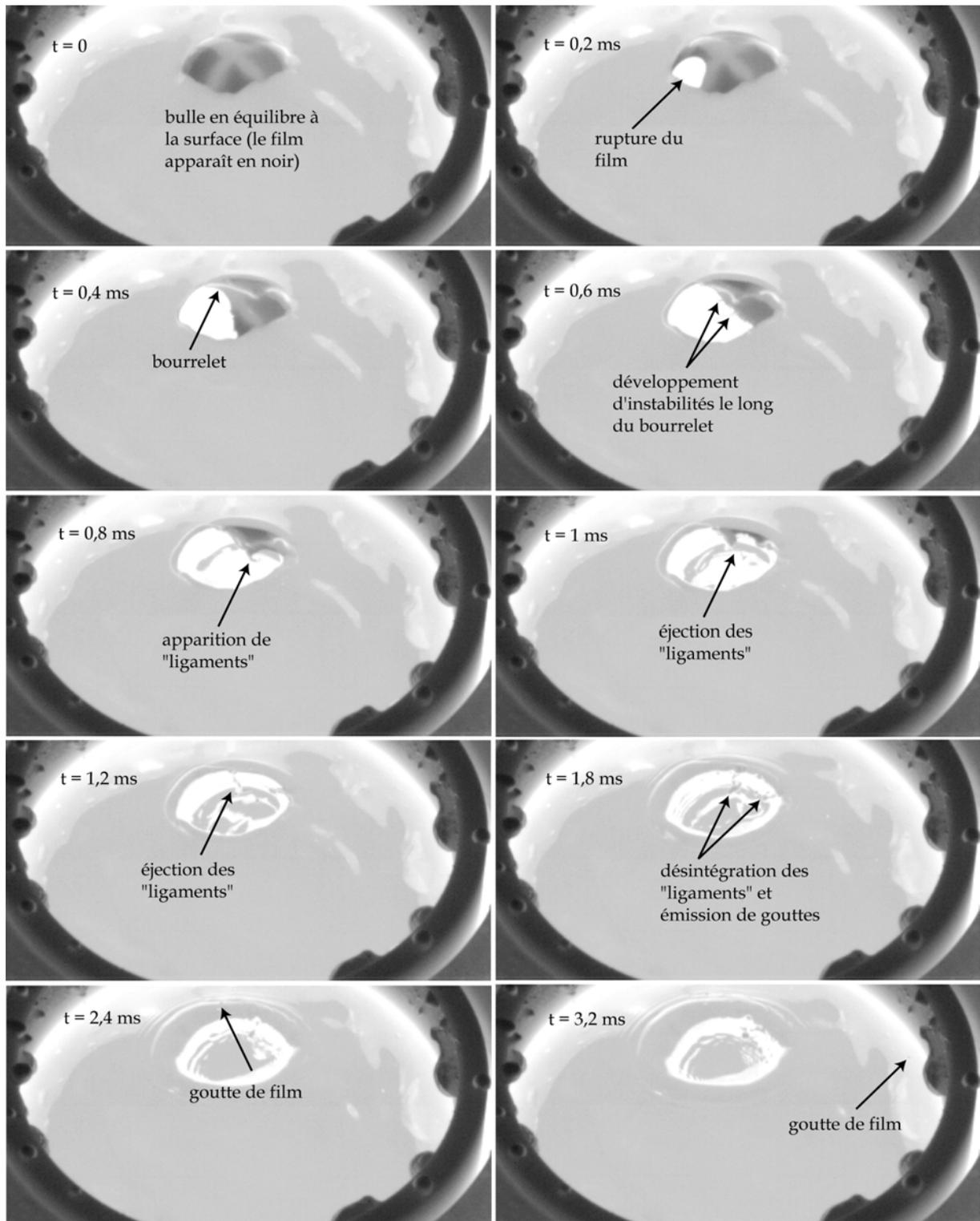
film. Ce phénomène est similaire à celui mis en évidence par Spiel (1998) lors de l'éclatement de bulles d'air à la surface de l'eau. En revanche, aucune projection de goutte de film n'a été observée, essentiellement en raison de la faible résolution des images.

A 5000 images/s, la caméra Phantom offre un champ d'observation beaucoup plus large et la qualité des images est largement supérieure à celle obtenue avec la caméra Kodak. Les figures 3.48 et 3.49 rassemblent une sélection d'images issues de deux séquences d'éclatement enregistrées à cette vitesse d'acquisition. Les images de la figure 3.48 sont consécutives et montrent une rupture en un seul point du film. On distingue sur les bords du trou la présence du bourrelet liquide (2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> images) déjà signalé par Blanchard (1963) et par Spiel (1998) dans le cas de l'eau. Sur la deuxième image, on aperçoit également des ligaments liquides qui se forment au niveau du bourrelet.



**Figure 3.48 :** Rupture du film – Images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d'acquisition : 5000 images/s, temps d'obturation : 1/100000 s)

Sur la figure 3.49, la rupture apparaît également en un point unique mais la durée de l'éclatement est plus longue ce qui nous permet d'observer des phénomènes supplémentaires. Ainsi, après la rupture du film, on peut distinguer sur la quatrième image l'apparition d'instabilités qui se développent tout au long du bourrelet. Ces instabilités entraînent la formation de ligaments liquides (5<sup>ème</sup> image) qui, après détachement (6<sup>ème</sup> et 7<sup>ème</sup> images), se désintègrent en donnant naissance à des gouttelettes (8<sup>ème</sup> image). Certaines de ces gouttelettes visibles à la caméra sont éjectées dans l'atmosphère du four (9<sup>ème</sup> et 10<sup>ème</sup> images). Elles ont une taille de l'ordre de quelques centaines de  $\mu\text{m}$ . Ce scénario est en tout point similaire à ceux observés par Ranz (1959), Pandit et Davidson (1990) ou Kowalski et Thomas (1994) dans le cas de l'eau (voir figure 3.14, 3.15 et 3.16 au § III.2.1).

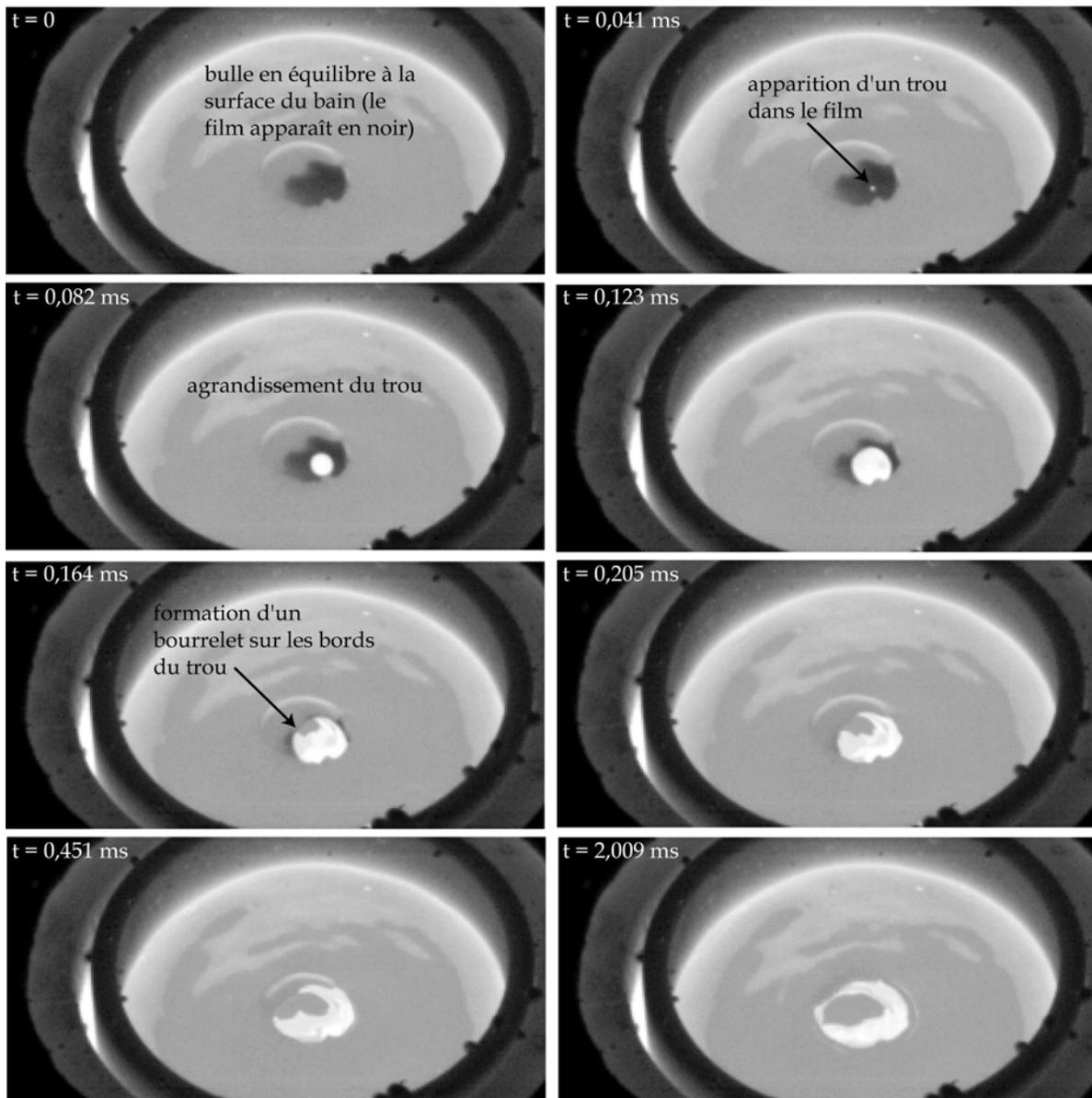


**Figure 3.49** : Rupture du film – Images issues d’une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d’acquisition : 5000 images/s, temps d’obturation : 1/100000 s)

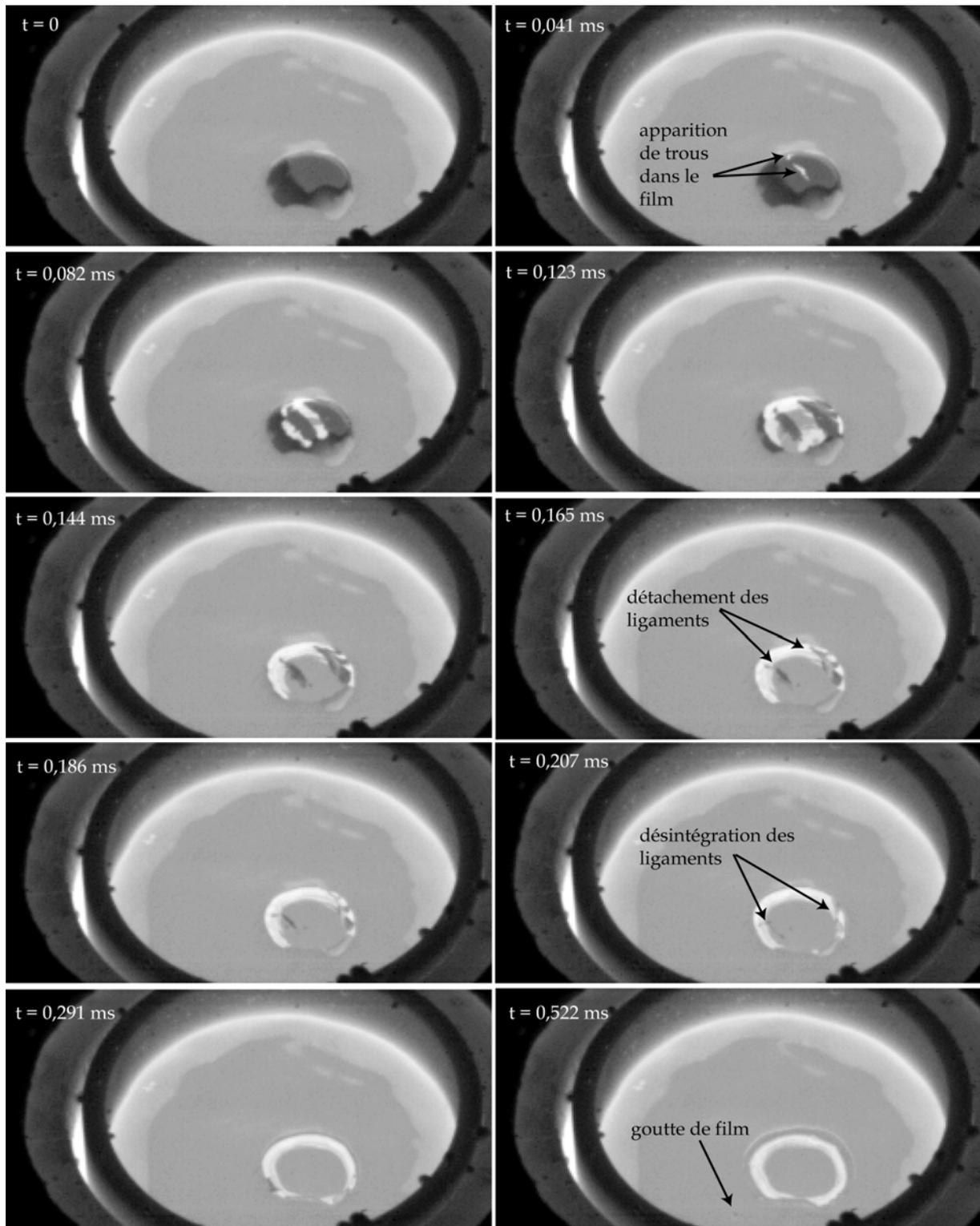
Comme avec la caméra Kodak, la totalité des séquences enregistrées à 5000 images/s avec la caméra Phantom montre une rupture du film en un point unique.

Pour observer les premiers instants de la rupture du film auxquels nous n’avons pas accès lorsque la vitesse d’acquisition est fixée à 5000 images/s, nous avons effectué quelques

enregistrements à 24500, 33000 et 65000 images/s à l'aide de la caméra Phantom. Si certaines des séquences obtenues font apparaître un mode de rupture en un seul point du film, d'autres en revanche révèlent la présence sur le film de plusieurs points de rupture. Les figures 3.50 et 3.51 montrent deux exemples d'éclatement de bulles filmés à 24500 images/s et correspondant respectivement à une rupture en seul point et à une rupture en plusieurs points. Sur la figure 3.50, la rupture apparaît très nettement sous la forme d'un point blanc qui s'agrandit peu à peu, propageant ainsi la rupture à la totalité du film. On distingue également sur les bords du trou la formation d'un bourrelet qui s'épaissit au fur et à mesure que le trou s'agrandit. Cependant, du fait de la diminution de la résolution des images induite par l'augmentation de la vitesse d'enregistrement, celui-ci apparaît moins nettement que sur les figures précédentes.



**Figure 3.50 :** Rupture du film en un seul point – Images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d'acquisition : 24500 images/s, temps d'obturation : 1/100000 s)

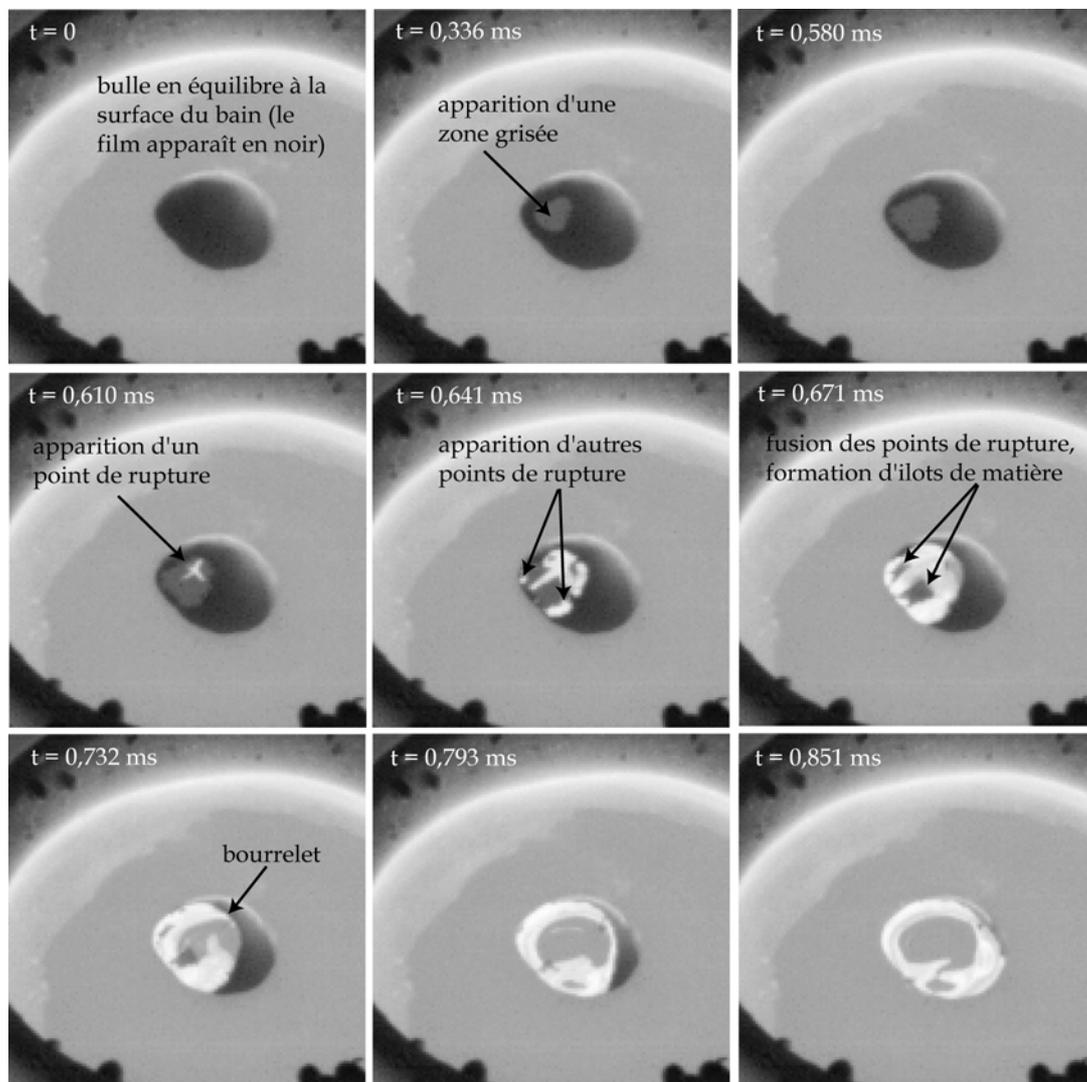


**Figure 3.51** : Rupture du film en plusieurs points - Images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d'acquisition : 24500 images/s, temps d'obturation : 1/100000 s)

Sur la figure 3.51, on observe l'apparition de plusieurs trous (2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> images) qui s'agrandissent et finissent par se rejoindre (3<sup>ème</sup> et 4<sup>ème</sup> images) entraînant la formation d'un

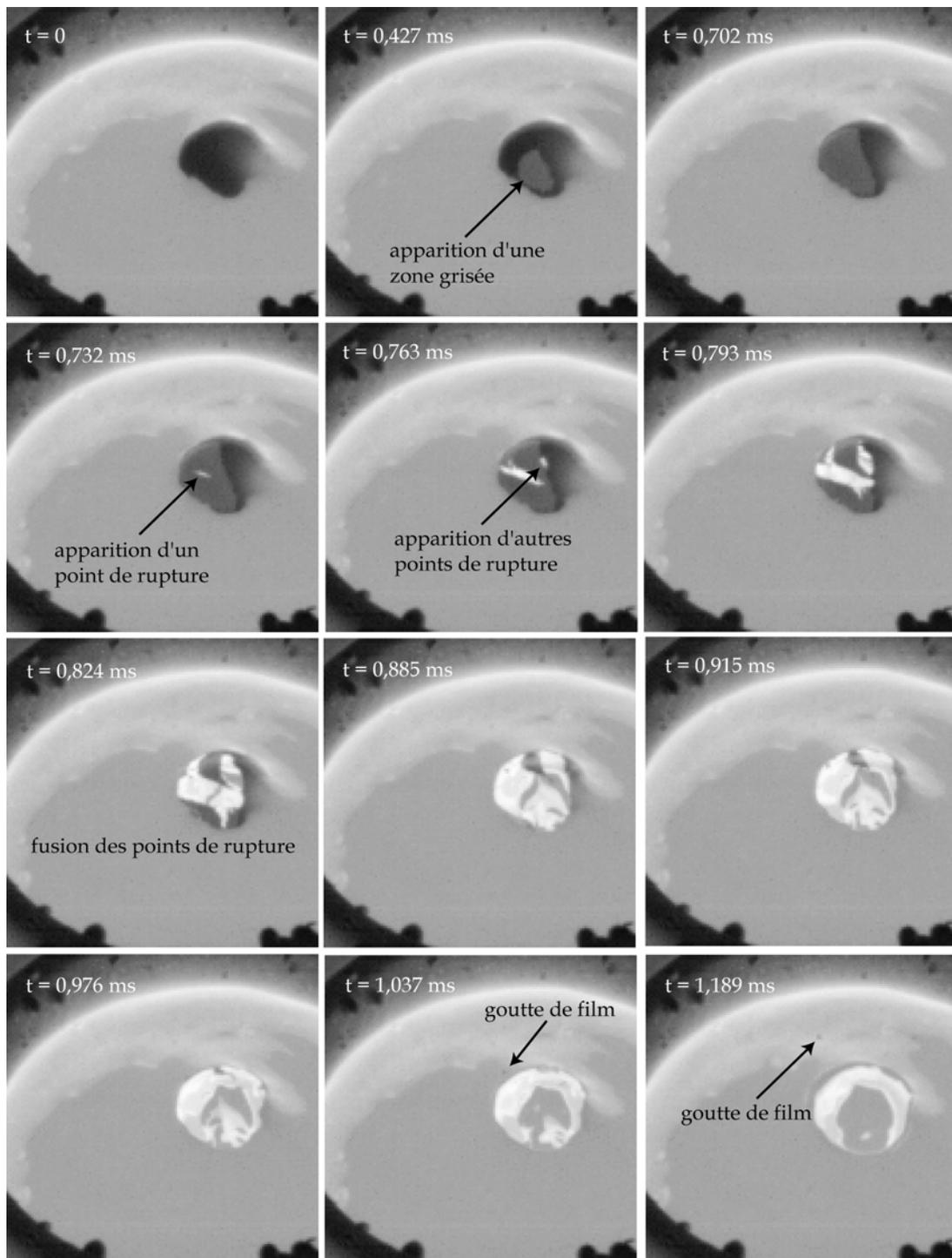
réseau de ligaments liquides. Ces ligaments se détachent et se désintègrent (5<sup>ème</sup>, 6<sup>ème</sup>, 7<sup>ème</sup> et 8<sup>ème</sup> images) en donnant naissance à des gouttelettes qui retombent dans le bain (9<sup>ème</sup> image) ou sont éjectées dans l'enceinte du four (10<sup>ème</sup> image).

Un examen attentif des séquences vidéo montrant une rupture en plusieurs points met en évidence l'apparition dans les instants précédant la rupture d'une zone de couleur grise à la surface du film qui, pour le reste, apparaît en noir sur les images. Les figures 3.52 et 3.53 illustrent ce phénomène. Les points de rupture apparaissent au niveau de cette zone grisée (4<sup>ème</sup> et 5<sup>ème</sup> images), s'agrandissent et finissent par fusionner donnant naissance à un trou unique dont la forme épouse en partie les contours de la zone grisée. Cette fusion entraîne la formation « d'îlots » de matière isolée qui se désintègrent en projetant éventuellement quelques gouttelettes. Simultanément, le trou unique, issu de la fusion des trous initiaux, évolue selon un scénario similaire à celui observé lors d'une rupture en un seul point : agrandissement du trou avec formation du bourrelet d'où peuvent se détacher de fines gouttelettes (deux dernières images).



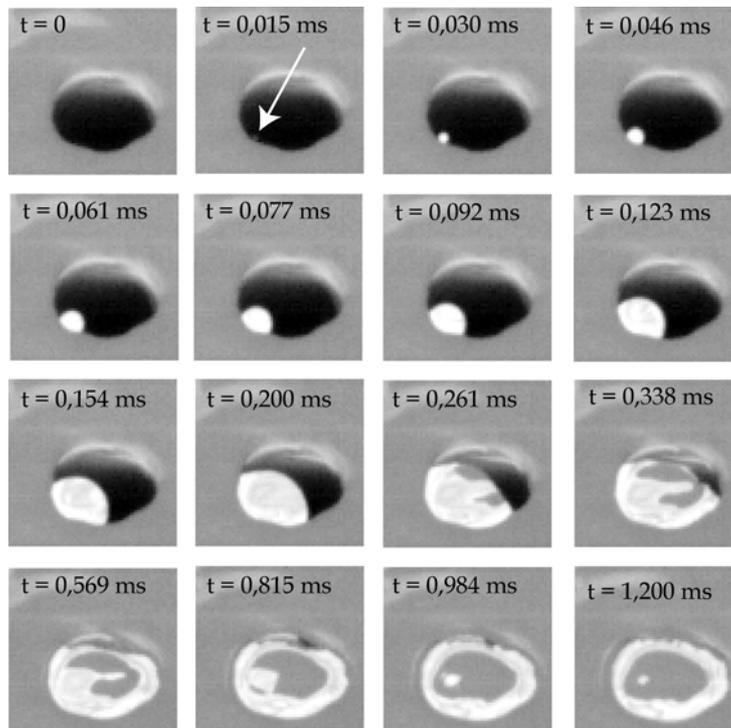
**Figure 3.52** : Rupture du film en plusieurs points, précédée du développement d'une zone grisée à la surface du film – Images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d'acquisition : 33000 images/s, temps d'obturation : 1/100000 s)

Comme on peut le voir sur ces deux figures, la taille de la zone grisée est relativement variable : elle peut être très petite ou recouvrir la quasi-totalité du film (voir aussi Annexe B2).



**Figure 3.53 :** Rupture du film en plusieurs points, précédée du développement d'une zone grisée à la surface du film ; images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d'acquisition : 33000 images/s, temps d'obturation : 1/100000 s)

Dans le cas d'une rupture en un seul point du film, aucune zone grisée ne se développe à la surface du film avant la rupture. En revanche, les séquences enregistrées à 65000 images/s révèlent l'apparition d'un point gris au niveau du point de rupture, dans l'instant précédant la rupture (voir figure 3.54, le point gris est signalé par la flèche blanche). Il est probable que ce point corresponde à l'amorce de la zone grisée que l'on observe lorsque la rupture a lieu en plusieurs points. Ici, cette zone n'a pas le temps de s'étendre car le point de rupture apparaît immédiatement (voir aussi Annexe B3).



**Figure 3.54** : Rupture du film en un seul point – Images issues d'une séquence vidéo obtenue à partir de la caméra Phantom (vitesse d'acquisition : 65000 images/s, temps d'obturation : 1/100000 s). La flèche blanche signale l'apparition d'un point gris au niveau du point de rupture.

Les deux modes de rupture décrits précédemment ont été observés en proportions égales et de façon aléatoire sur la totalité des séquences enregistrées à l'aide de la caméra Phantom. Aucune relation n'a pu être mise en évidence entre l'un ou l'autre des modes et les paramètres opératoires (taille de bulle, composition du bain, température...). L'ensemble des phénomènes présentés ci-dessus ont été mis en évidence pour une gamme de taille de bulle comprise entre 7 et 12 mm et pour deux types de bain : acier classique ou acier riche en soufre. La période d'utilisation de la caméra Phantom ayant été relativement courte (2 mois), nous n'avons pu étendre ces résultats aux petites tailles de bulles et au cas d'un acier liquide recouvert de laitier. Nous reviendrons sur l'interprétation des observations présentées ci-dessus au § III.5.2.

### III.4.2. Caractérisation des gouttes de jet

#### *Nombre de gouttes de jet*

Le nombre de gouttes de jet émises lors de l'éclatement de bulles de gaz à la surface de l'acier liquide a été déterminé grâce à l'utilisation de la vidéo rapide. Les résultats, rassemblés dans le tableau 3.5, ont été obtenus lors d'essais de bullage sur un bain d'acier nu (type XC 38).

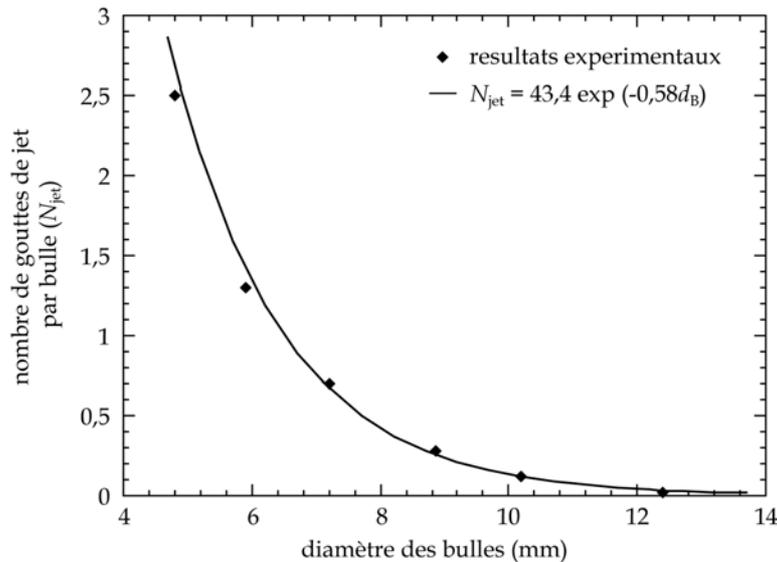
**Tableau 3.5 :** Quantification de la formation des gouttes de jet (probabilité de projection des gouttes de jet en fonction de la taille de la bulle mère)

Diamètre moyen des bulles observées ( $d_B$ )	Nombre de bulles observées	Nombre de gouttes de jet projetées	Nombre de gouttes de jet par bulles ( $N_{jet}$ )
4,9 mm	106	265	2,5
6,0 mm	110	143	1,3
7,1 mm	83	58	0,7
8,7 mm	68	19	0,28
10,2 mm	58	7	0,12
12,4 mm	33	1	0,03

On observe que le nombre de gouttes de jet formées lors de l'éclatement d'une bulle diminue lorsque la taille de la bulle augmente. Par analogie avec les relations proposées dans la littérature pour les systèmes air-eau [Wu (1989)], nous proposons de décrire l'évolution du nombre de gouttes de jet par une loi exponentielle de la forme :

$$N_{jet} = A \exp(-Bd_B), \text{ avec } A=43,4 \text{ et } B=0,58 \quad (3.31)$$

valable pour un diamètre de bulle  $d_B$  (exprimé en mm) compris dans l'intervalle 4 - 12 mm. Les coefficients ont été déterminés par régression à partir des résultats expérimentaux (voir figure 3.55). Ils sont très proches de ceux qu'avait obtenus Huber (2000) à partir d'un nombre de mesures moins élevé (cf. tableau 3.3).



**Figure 3.55** : Nombre de gouttes de jet en fonction de la taille de la bulle mère

### *Taille des gouttes de jet*

L'utilisation des séquences vidéo est peu adaptée à la détermination de la taille des gouttes de jet, l'erreur de mesure étant d'au moins 0,4 mm (2 pixels de la caméra Kodak). Néanmoins, les images obtenues montrent que la majorité des gouttes de jet ne sont pas aspirées par le dispositif de captage mais retombent dans le bain ou à proximité du creuset. De plus, aucune relation entre la taille des gouttes projetées et leur trajectoire (vitesse d'impulsion initiale, angle initial de trajectoire) n'a pu être observée. Nous considérons donc que les gouttes présentes autour du creuset à la fin de chaque essai expérimental sont représentatives de la population de gouttes de jet projetées.

Pour caractériser leur taille, ces gouttes sont recueillies après refroidissement de la charge, puis pesées à l'aide d'une balance Sartorius BP 121S (précision des mesures :  $10^{-4}$  g). A partir de la masse volumique de l'acier liquide estimé à  $7000 \text{ kg m}^{-3}$  et de la masse des gouttes, on obtient leur taille (diamètre équivalent en volume). La figure 3.56 donne quelques exemples de distributions de taille de gouttes de jet : deux d'entre elles (correspondant à des bulles de 7,1 et 8,2 mm) ont été obtenues dans le cadre de cette étude, les deux autres (correspondant à des bulles de 7,4 et 8,7 mm) sont issues des travaux de Huber (2000). Ces distributions sont exprimées à l'aide de la fraction en nombre cumulé en fonction du diamètre de gouttes.

A partir des résultats de la pesée, les populations de particules sont caractérisées à l'aide du diamètre médian de la distribution. L'ensemble des résultats obtenus pour les différentes tailles de bulles étudiées sont rassemblés dans la figure 3.57. Ils montrent que la taille caractéristique des gouttes de jet émises lors de l'éclatement d'une bulle est directement proportionnelle à la taille de la bulle mère. Dans notre cas, la taille des gouttes de jet représente entre 12 et 18 % de la taille de la bulle, ce qui correspond aux résultats obtenus dans le cas des systèmes air-eau.

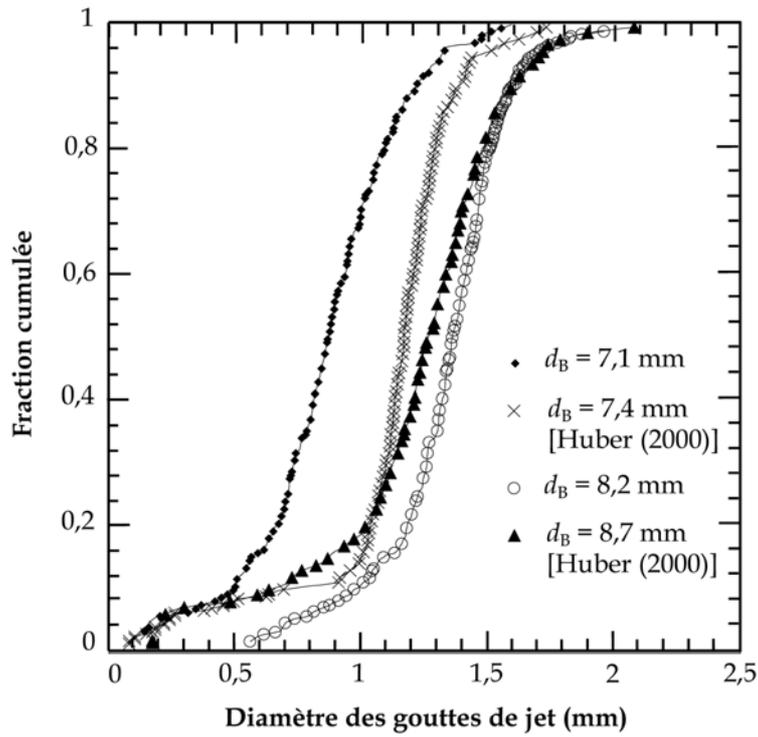


Figure 3.56 : Distributions de taille des gouttes de jet correspondant à quatre tailles de bulles (7,1 mm – 7,4 mm – 8,2 mm – 8,7 mm) ; fraction en nombre cumulée

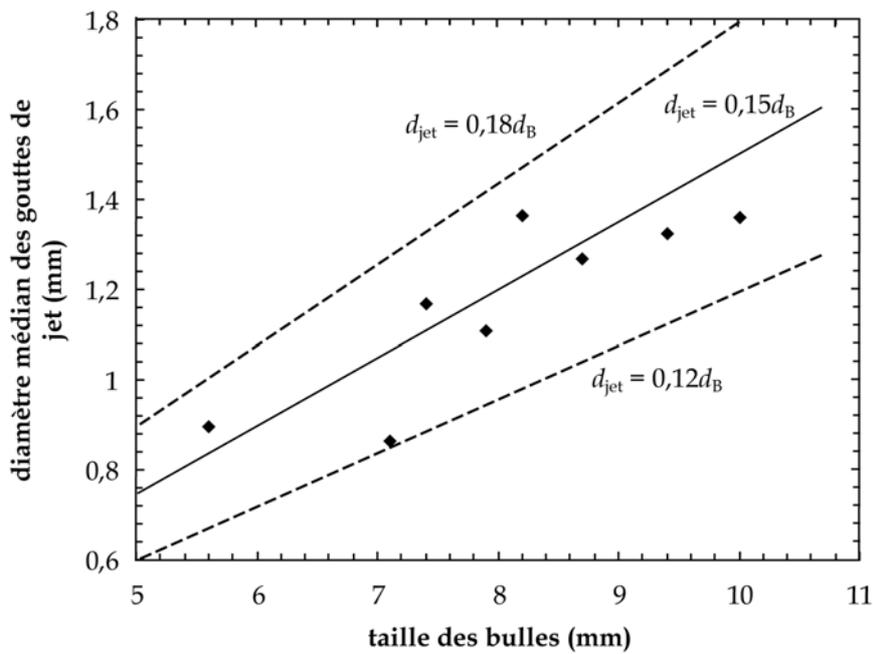


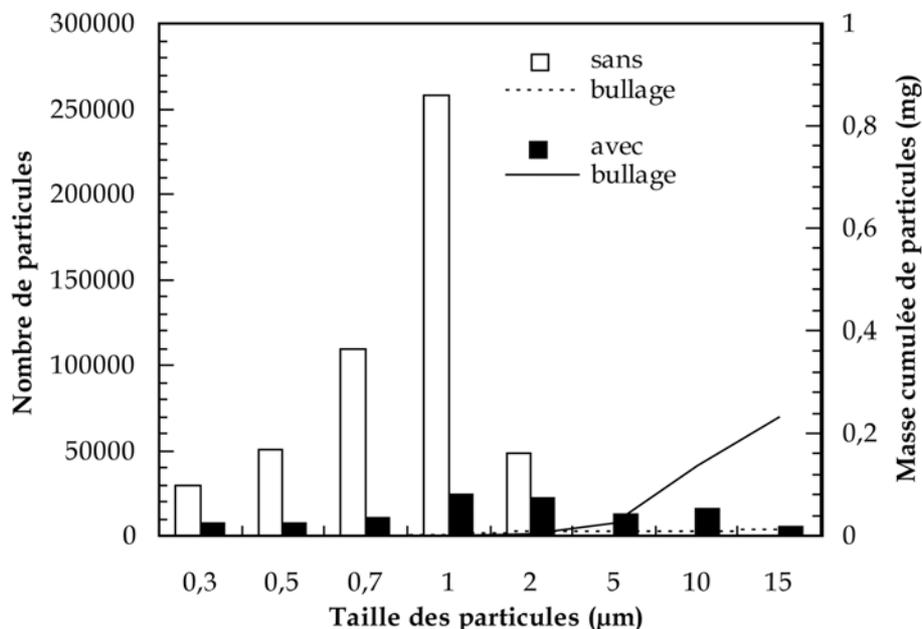
Figure 3.57 : Taille caractéristique des gouttes de jet en fonction de la taille de la bulle mère

### III.4.3. Caractérisation des gouttes de film

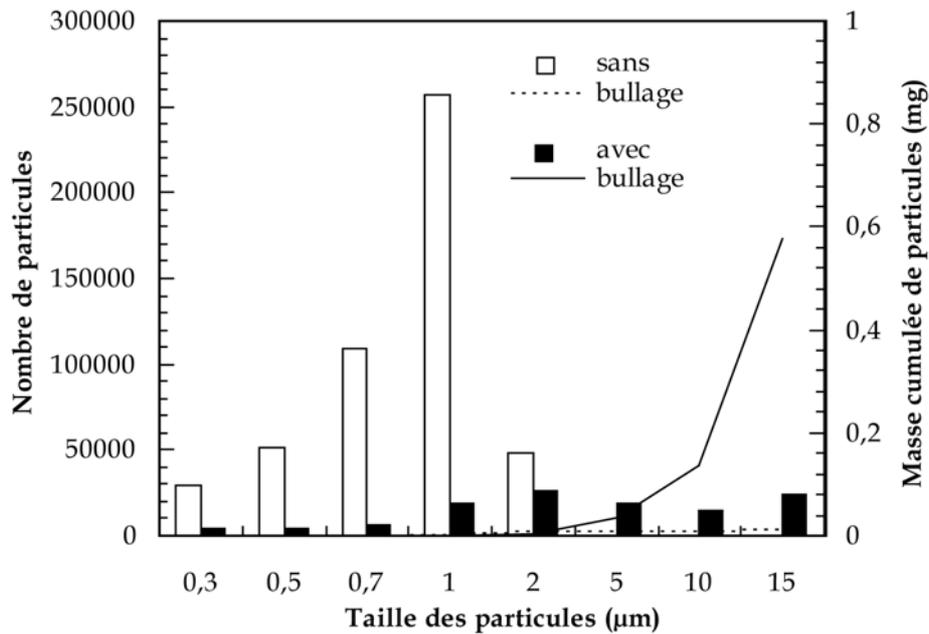
Les gouttes de film ont été caractérisées de deux manières : *in-situ*, à l'aide du compteur de particules APC 300, et de manière indirecte à partir des particules prélevées sur les filtres. La caractérisation *in-situ* permet d'avoir accès en temps réel à la granulométrie des particules émises au cours des essais expérimentaux. Le prélèvement des particules sur filtres offre moins de souplesse que la technique précédente, puisqu'il nécessite l'utilisation de moyens de caractérisation a posteriori (microscopie électronique, granulométrie laser, analyse gravimétrique, diffraction des rayons X, BET). Néanmoins, il permet d'avoir accès à un plus grand nombre d'informations concernant les particules émises lors de la fusion (morphologie, composition chimique, minéralogie, granulométrie, surface spécifique, quantification). Quelle que soit la méthode de caractérisation utilisée (*in-situ* ou indirecte), les résultats présentés ci-dessous ont été obtenus en comparant les prélèvements effectués avec et sans bullage, les deux types de prélèvements étant espacés d'un intervalle de temps d'environ 30 secondes, de manière à s'assurer de conditions opératoires identiques par ailleurs.

#### *Caractérisation in-situ*

Les figures 3.58 et 3.59 montrent les résultats obtenus lors d'une analyse *in-situ* à partir du compteur de particules APC 300.



**Figure 3.58** : Distribution granulométrique des aérosols obtenue à partir de l'APC 300 pour une minute de prélèvement ; taille moyenne des bulles : 6,1 mm



**Figure 3.59 :** Distribution granulométrique des aérosols obtenue à partir de l'APC 300 pour une minute de prélèvement ; taille moyenne des bulles : 7,9 mm

La durée de prélèvement est de 30 secondes mais les résultats étant rapportés à 1 pied cube (28,3 L), chaque graphe correspond en fait à un prélèvement de 60 secondes. Le débit de bullage peut varier d'un essai à l'autre en fonction de la taille des bulles et du débit de gaz initial dans le dispositif d'injection. Le nombre de bulles ayant éclaté au cours de chaque prélèvement n'est donc pas toujours identique. Ainsi, le premier cas présenté ci-dessus correspond à l'éclatement de 162 bulles d'une taille moyenne de 6,1 mm, tandis que le deuxième cas correspond à l'éclatement de 106 bulles d'une taille moyenne de 7,9 mm.

En l'absence de bullage, les particules, qui proviennent de la vaporisation de la charge, se situent majoritairement dans une gamme de taille allant de 0,3 à 2 µm. Dans les mêmes conditions expérimentales mais en ajoutant la contribution de l'éclatement des bulles, on constate l'apparition de grosses particules (plus de 50% des particules ont une taille supérieure à 2 µm), dont le nombre augmente lorsque la taille de la bulle mère augmente. Par ailleurs, le nombre de particules fines et le nombre total de particules sont plus faibles en présence de bullage, alors que la masse totale de particules captée est plus importante en raison du poids que représentent les grosses particules par rapport aux fines. La contribution des projections provoquées par l'éclatement des bulles s'accompagne donc d'une modification de la distribution granulométrique, qui peut s'expliquer par un phénomène d'agglomération entre grosses et fines particules au cours du transport depuis le creuset jusqu'au compteur. Il n'est donc pas possible d'obtenir par ce biais la distribution granulométrique initiale des gouttes de film. On peut néanmoins remarquer que le nombre de « grosses particules » augmente sensiblement avec la taille de la bulle mère, bien que le nombre de bulles ayant éclaté au cours du prélèvement diminue.

Les résultats obtenus à partir du compteur de particules ont été utilisés pour quantifier l'émission de gouttes de films. Nous avons repris la méthode d'Huber (2000) pour

estimer la masse de particules émises à partir des distributions granulométriques données par le compteur moyennant quelques hypothèses simplificatrices :

- le dépôt de matière sur les parois est négligé (sous-estimation des projections) ;
- pour déterminer la masse des particules prélevées, on considère que les particules d'une tranche granulométrique donnée (par ex. 1 à 2  $\mu\text{m}$ ) ont toutes un diamètre égal à la moyenne arithmétique des bornes de la tranche (1,5  $\mu\text{m}$  pour cet exemple). Cette hypothèse est plus lourde pour les classes correspondant aux grandes tailles ;
- la taille moyenne équivalente en volume des particules de plus de 15  $\mu\text{m}$  est fixée arbitrairement à 17  $\mu\text{m}$ . Ici encore, cette hypothèse affecte fortement le résultat final en raison du poids des particules de cette classe ;
- toutes les particules, y compris celles qui proviennent de la volatilisation de la charge, ont une masse volumique de 7000  $\text{kg m}^{-3}$  ;
- la masse des gouttes de film est obtenue par différence entre la masse calculée pour le prélèvement avec bullage et la masse calculée pour le prélèvement sans bullage.

Les résultats obtenus à partir des deux distributions granulométriques présentées dans les figures 3.58 et 3.59 sont rassemblés dans le tableau 3.6.

**Tableau 3.6 :** Quantification des émissions de gouttes de film à partir des résultats donnés par le compteur de particules

$d_B$	$Q_B$ (bulles $\text{min}^{-1}$ )	$M_p$ ( $\mu\text{g min}^{-1}$ )	$M_B$ ( $\mu\text{g/bulle}$ )	$M_g$ ( $\text{g m}^{-3}$ )
6,1 mm	162	231	1,38	12
7,9 mm	106	578	5,32	21
8 mm [Huber (2000)]		620	10,33	38,5

avec :  $Q_B$  débit de bullage  
 $M_p$  masse de gouttes de film pour 1 min. de prélèvement  
 $M_B$  masse de gouttes de film correspondant à l'éclatement d'une bulle  
 $M_g$  masse de gouttes de film pour 1  $\text{m}^3$  de gaz injecté

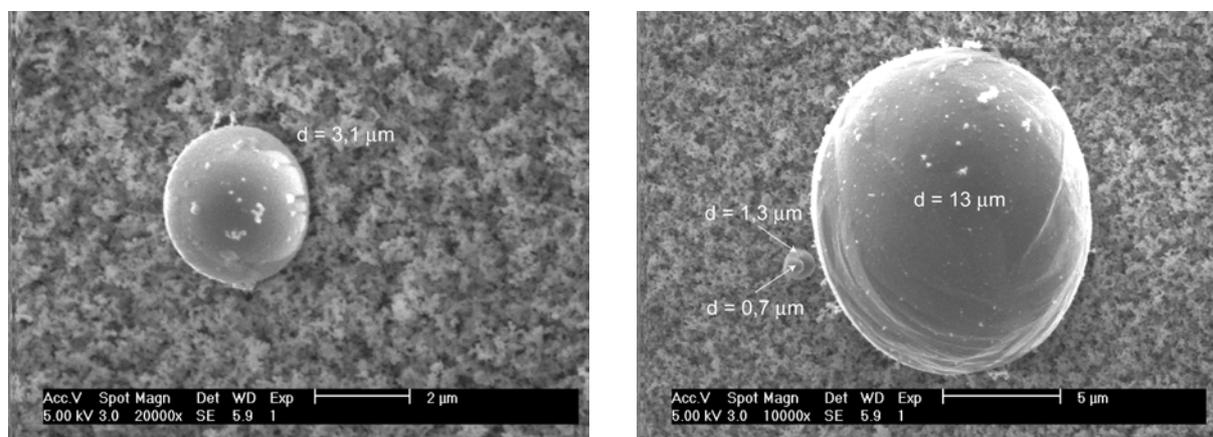
La masse de gouttes de film émise pendant une minute de prélèvement ( $M_p$ ) est de 231  $\mu\text{g}$  pour des bulles de 6,1 mm de diamètre et de 578  $\mu\text{g}$  pour des bulles de 7,9 mm de diamètre. Pour une comparaison plus réaliste de ces résultats, ceux-ci ont été rapportés à l'éclatement d'une bulle ( $M_B$ ) et au volume de gaz injecté ( $M_g$ ). On constate une nette augmentation des émissions de gouttes de film avec la taille de bulle,  $M_B$  passant de 1,38 à 5,32  $\mu\text{g/bulle}$  et  $M_g$  de 12 à 21  $\text{g par m}^3$  de gaz injecté. Nous noterons que ces valeurs sont inférieures à celles déterminées par Huber (2000) lors d'un essai avec des bulles dont la taille était estimée à 8 mm. Plus précisément, la valeur de  $M_p$  donnée par Huber (620  $\mu\text{g min}^{-1}$ ) est proche de la valeur que nous avons mesurée pour des bulles de 7,9 mm, alors que les valeurs de  $M_B$  et  $M_g$  diffèrent. Ceci peut être dû aux imprécisions sur le nombre et le diamètre des bulles lors de l'expérience d'Huber. Nous comparons un peu plus loin les valeurs du tableau

3.6 à celles obtenues par pesée des filtres. Rappelons que les essais employant le compteur de particules APC 300 se sont arrêtés avec la panne de l'appareil.

### *Caractérisation des particules fines par microscopie*

L'observation au MEB des particules fines prélevées sur les filtres lors d'essais avec bullage révèle la présence de deux types de particules (voir figure 3.60) :

- des particules sphéroïdales bien dispersées sur l'ensemble de la surface du film, dont la taille varie de quelques centaines de nm à plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$  ;
- des particules submicroniques fortement agglomérées qui recouvrent la surface du filtre en formant une structure d'aspect « spongieux ».



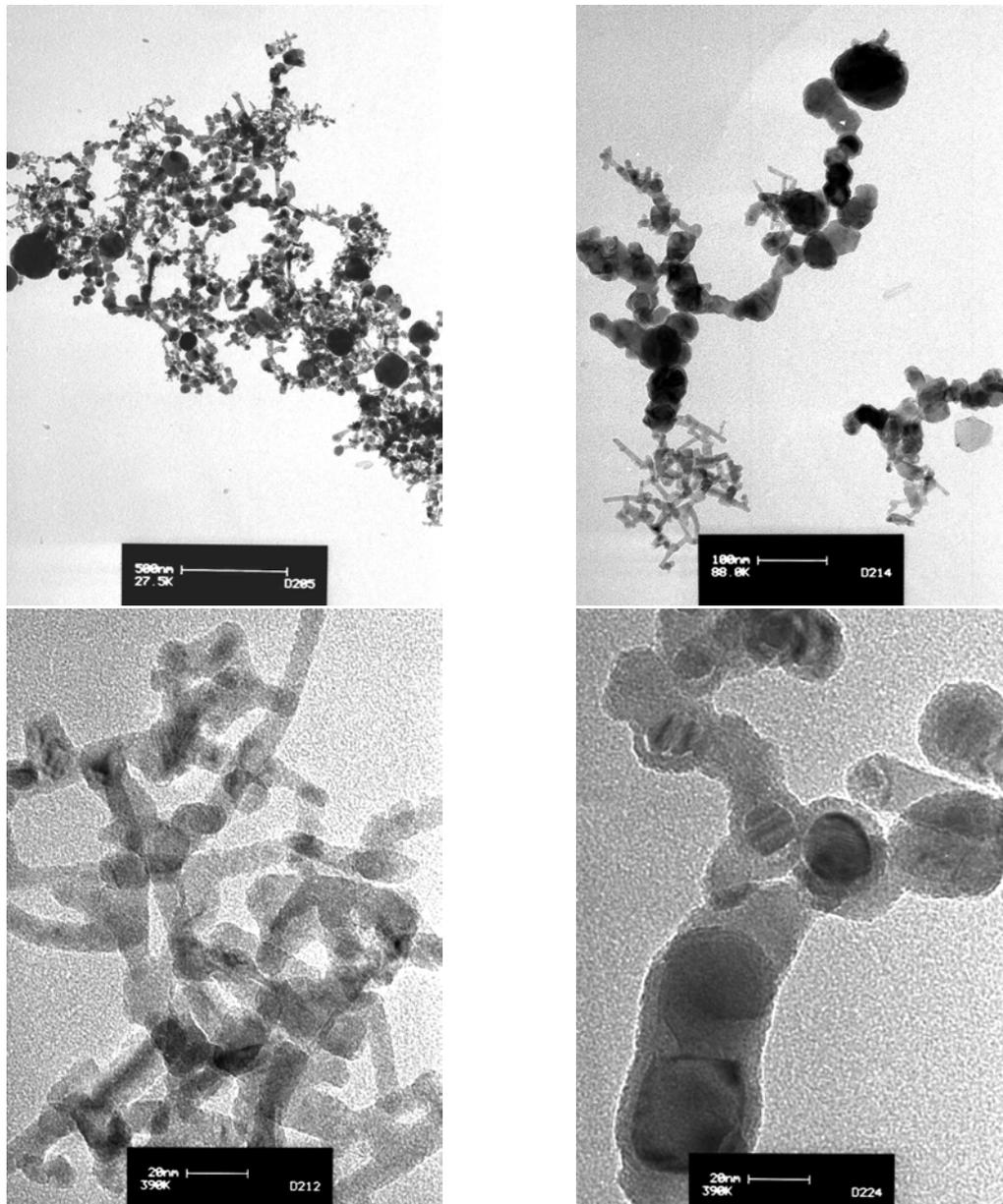
**Figure 3.60 :** Echantillon de poussières issues d'essais expérimentaux avec bullage (images obtenues à partir de filtres recouverts d'un film de carbone et d'un film d'or)

L'analyse par EDS, qui permet de déterminer qualitativement les éléments présents dans les échantillons observés au MEB, montre que les particules sphéroïdales sont constituées essentiellement de fer tandis que les agglomérats de particules submicroniques contiennent également du manganèse en quantité non négligeable.

On retrouve cette structure « spongieuse » constituée de particules submicroniques agglomérées sur les filtres utilisés pour les prélèvements en l'absence de bullage. En revanche, aucune particule sphéroïdale n'a été détectée dans ce type d'échantillons.

Quelle que soit la technique utilisée pour préparer les échantillons (voir § III.3.5), les fines particules agglomérées échappent au pouvoir de résolution du MEB. Il est donc nécessaire d'utiliser la microscopie électronique en transmission (MET) pour déterminer la forme et la taille de ces particules. La figure 3.61 donne quelques exemples d'images obtenues au MET à partir d'échantillons prélevés en l'absence de bullage. Ces images ont été prises par Valérie Demange du Laboratoire de Science et Génie des Surfaces (LSGS) de l'École des Mines de Nancy. Les particules ont été préalablement mises en suspension dans une solution d'éthanol et désagglomérées dans une cuve à ultrasons avant d'être déposées

sur une grille d'observation. L'utilisation de cette technique révèle l'extrême finesse des particules - de quelques nm à moins de 200 nm - et la présence de différentes morphologies - particules sphériques, particules facettées, bâtonnets. Par ailleurs, l'analyse par microdiffraction électronique révèle que les principales phases présentes dans ces particules sont issues du fer et du manganèse.



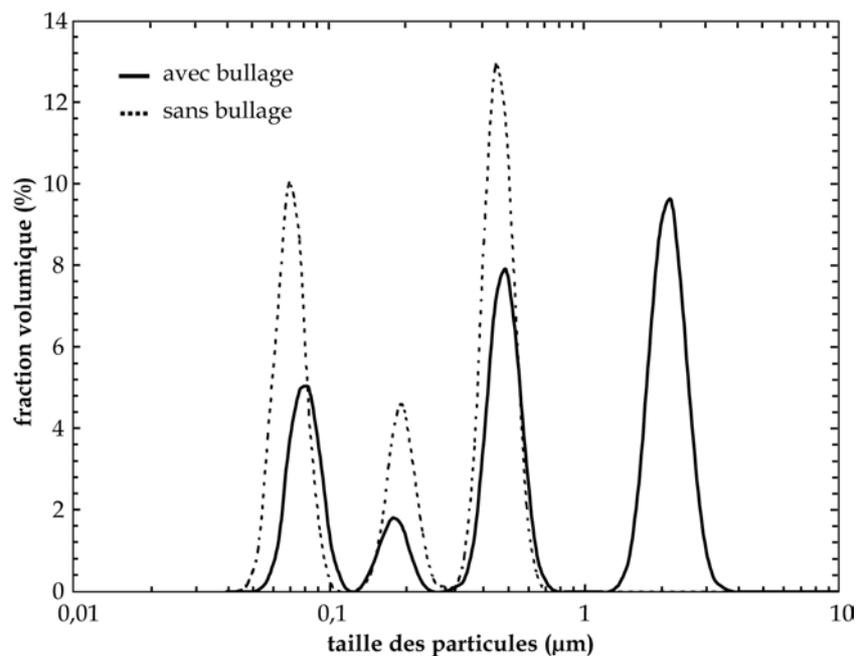
**Figure 3.61 :** Images MET d'échantillons de particules issues de la vaporisation du bain

Les deux populations de particules - particules nanométriques et « grosses » particules sphéroïdales - prélevées à partir de notre dispositif expérimental sont également présentes dans les poussières de four électrique (voir chapitre II). Les fines particules sont attribuées à la vaporisation du bain métallique, ce que confirme la présence de manganèse en quantité non négligeable dans ces particules. Quant aux particules sphéroïdales, dont la taille est le plus souvent supérieure à 500 nm et peut même atteindre plusieurs dizaines de

micromètres, elles sont associées de façon unanime à un phénomène de projection de gouttelettes liquides. Présentes uniquement dans les échantillons prélevés avec bullage, elles correspondent aux gouttes de film émises lors de l'éclatement des bulles de gaz à la surface du bain liquide.

### *Granulométrie des gouttes de film*

Certains des échantillons de particules prélevées sur filtre ont été analysés par un granulomètre Coulter LS 230. Cet équipement permet d'obtenir la distribution volumique relative des tailles de particules sur une gamme comprise entre 0,04 et 2000  $\mu\text{m}$ . Les particules, mises en suspension dans l'alcool, sont désagglomérées par agitation mécanique et ultrasons. La figure 3.62 montre les résultats obtenus pour deux échantillons prélevés consécutivement, l'un en l'absence de bullage, l'autre en présence de bulles (taille moyenne des bulles : 7 mm).



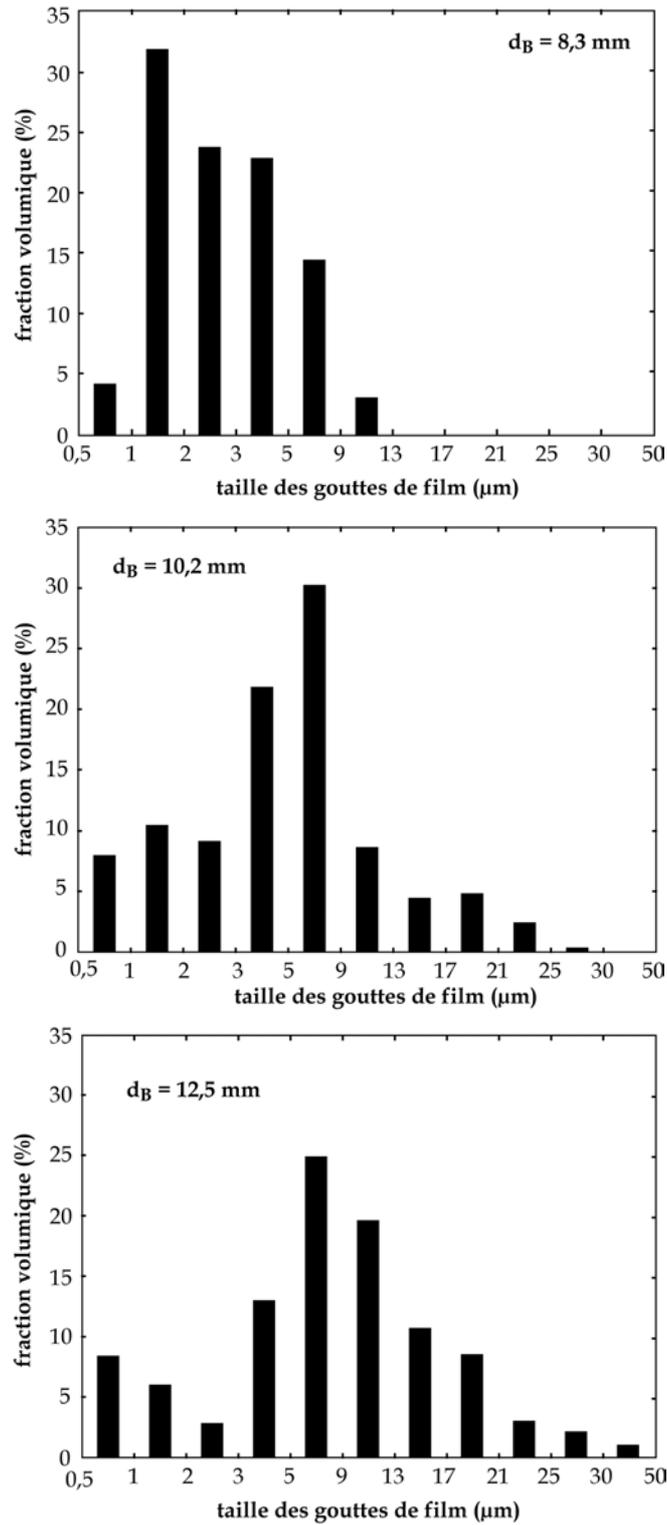
**Figure 3.62 :** Distribution volumique relative des tailles de particules prélevées en présence de bullage ( $d_B = 7 \text{ mm}$ ) et sans bullage

La majeure partie des particules contenues dans les échantillons de poussières prélevés en l'absence de bullage ont une taille comprise entre 50 nm et moins de 700 nm. Cette gamme de taille est sensiblement plus élevée que celle observée au MET pour le même type d'échantillons. Il est probable que le protocole utilisé pour préparer les échantillons ne permette pas de désagglomérer complètement les particules mises en suspension. Cette hypothèse semble confirmée par les mesures de surface spécifique réalisées par la technique BET qui montrent que les particules issues de la vaporisation du bain ont une taille moyenne de 26 nm.

Dans les échantillons prélevés en présence de bullage, on retrouve sensiblement la même distribution de taille pour les fines particules, à laquelle s'ajoutent des particules microniques qui correspondent aux gouttes de film émises lors de l'éclatement des bulles. Les distributions obtenues par cette technique et celles fournies par le compteur de particules sont difficilement comparables : les seuils de détection des deux méthodes sont différents, l'une donne des distributions en volume l'autre des distributions en nombre, le circuit de captage (notamment sa longueur) n'est pas le même... Le seul véritable point commun est qualitatif : les deux distributions mettent clairement en évidence l'apparition de particules microniques en présence de bullage.

A partir de ces mesures granulométriques et connaissant les quantités de particules prélevées avec et sans bullage, nous avons estimé la distribution relative des tailles de gouttes de film en « soustrayant » les deux types de résultats. La figure 3.63 décrit les distributions obtenues pour des tailles moyennes de bulles respectivement de 8,3 mm, 10,2 mm et 12,5 mm.

On peut constater un élargissement du spectre de taille ainsi qu'une augmentation de la taille moyenne des gouttes lorsque la taille de la bulle augmente, ce que nous avons déjà pu observer de manière qualitative au MEB. Néanmoins, la majeure partie des gouttes de film ont une taille inférieure à 20  $\mu\text{m}$ , comme dans les échantillons de poussières de four électrique à arc (voir § II.1.2). Remarquons ici qu'il n'en est pas de même pour les distributions obtenues par Han et Holappa (2003) (cf. figure 3.30), qui montrent des projections entre 50 et 500  $\mu\text{m}$  que nous n'observons pas. En effet, notre dispositif de captage a été dimensionné de façon à imiter le système d'aspiration des fumées d'un four électrique, ce qui ne nous permet pas de prélever les particules dont la taille est supérieure à 90  $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, les masses projetées reportées par Han et Holappa (2003) sont très supérieures à celles que nous relevons, sans doute parce que ces auteurs ne distinguent pas les gouttes de film des gouttes de jet.



**Figure 3.63 :** Distributions de taille des gouttes de film issues de l'éclatement de bulles à la surface de l'acier liquide ( $d_B = 8,3 \text{ mm}$ ,  $10,2 \text{ mm}$  et  $12,5 \text{ mm}$ ).

### Quantification des émissions de gouttes de film par analyse gravimétrique

Contrairement au compteur de particules, l'analyse gravimétrique permet de déterminer précisément les quantités de particules émises au cours du prélèvement. Le tableau 3.7 synthétise les résultats obtenus pour les trois types de bain (acier classique, acier riche en soufre, acier recouvert d'une couche de laitier).

**Tableau 3.7 :** Quantification des émissions de gouttes de film par analyse gravimétrique

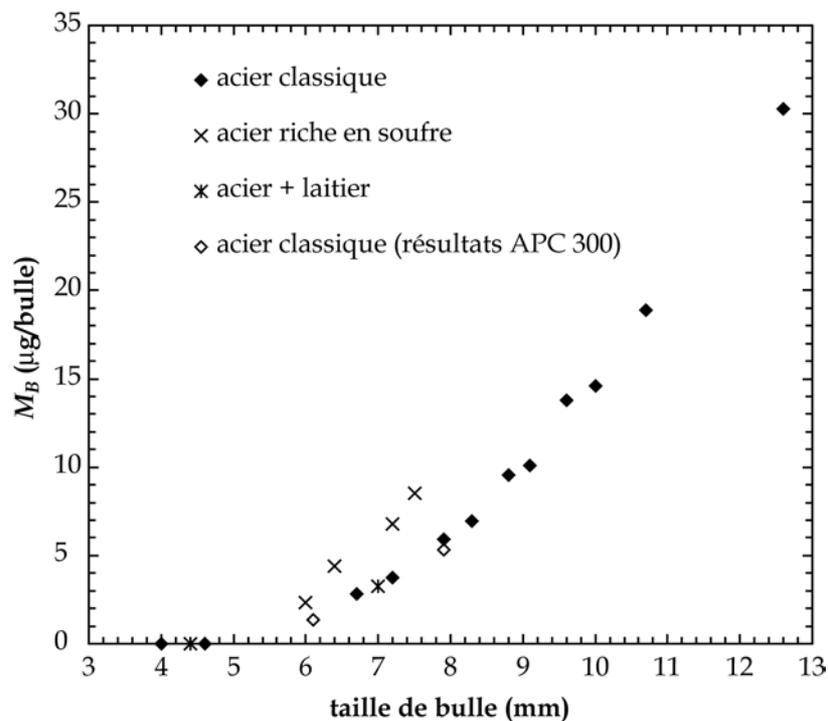
	$d_B$ (mm)	$M_B$ ( $\mu\text{g}/\text{bulle}$ )	$M_g$ ( $\text{g m}^{-3}$ )
<b>Acier</b>	4	non-déecté	non-déecté ( $< 1 \text{ g m}^{-3}$ )
	4,6	non-déecté	non-déecté ( $< 1 \text{ g m}^{-3}$ )
	6,7	2,83	17,95
	7,2	3,75	19,19
	7,9	5,92	22,93
	8,3	6,93	23,15
	8,8	9,55	26,76
	9,1	10,1	25,60
	9,6	13,8	29,79
	10	14,6	27,88
	10,7	18,9	29,47
12,6	30,3	28,93	
<b>Acier +soufre</b>	6	2,35	20,78
	6,4	4,40	32,06
	7,2	6,80	34,80
	7,5	8,50	38,48
<b>Acier +laitier</b>	4,4	non-déecté	non-déecté ( $< 1 \text{ g m}^{-3}$ )
	7	3,28	18,26

La mention « non détecté » correspond à des essais expérimentaux pour lesquels aucune différence de masse n'a pu être mesurée entre le prélèvement avec bullage et le prélèvement sans bullage. Cela peut signifier deux choses :

- soit il n'y a pas de goutte de film émise,
- soit la quantité de gouttes de film émise est inférieure à la sensibilité de la balance Mettler ( $10^{-5}$  g).

Les figures 3.64 et 3.65 reprennent les résultats présentés dans le tableau 3.7 et ceux obtenus à partir de l'APC 300. Le graphe 3.64 montre l'évolution de la masse de gouttes de film émises lors de l'éclatement d'une bulle ( $M_B$ ) en fonction de la taille de la bulle mère. Bien que la quantification des émissions soit beaucoup moins précise lorsqu'elle est basée sur les mesures du compteur de particules, les deux techniques donnent des résultats similaires. On observe ainsi une augmentation très nette de la masse de gouttes de film avec la taille de la bulle mère.

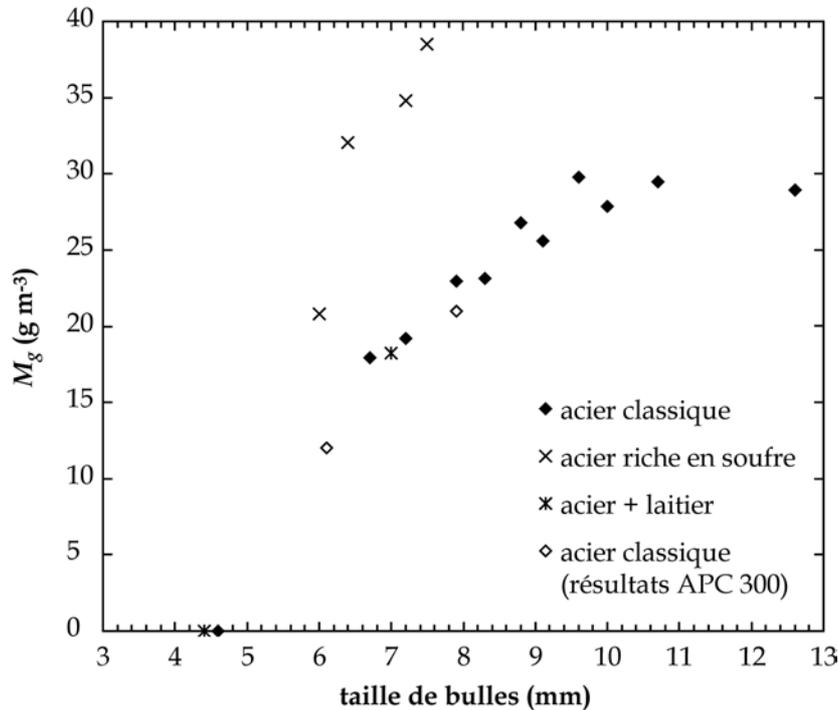
Les résultats obtenus en présence d'une couche de laitier quoique peu nombreux, sont similaires à ceux obtenus avec un bain d'acier nu de composition classique (XC 38). En revanche, lorsque le bain d'acier est riche en soufre, l'éclatement des bulles génère une quantité de gouttes de film plus élevée qu'en présence d'un acier classique. Enfin, lorsque la taille des bulles est inférieure à 4,6 mm, on ne détecte aucune émission de gouttes de film. Ce phénomène est particulièrement flagrant dans le cas de l'acier classique nu ou recouvert d'une couche de laitier, mais n'a pu être mis en évidence pour un acier riche en soufre.



**Figure 3.64 :** Evolution des quantités de gouttes de film émises lors de l'éclatement d'une bulle en fonction de la taille de la bulle

Le graphe 3.65 illustre l'évolution de la masse de gouttes de film émise pour  $1 \text{ m}^3$  de gaz injecté ( $M_g$ ), en fonction de la taille moyenne des bulles. Dans la gamme de taille étudiée ( $d_B$  compris entre 4 et 13 mm),  $M_g$  varie de moins de  $1 \text{ g m}^{-3}$  (aucune émission de gouttes de film détectée) à près de  $30 \text{ g m}^{-3}$  dans le cas de l'acier nu ou recouvert par une couche de laitier. Lorsque l'acier est riche en soufre,  $M_g$  est beaucoup plus élevée et peut atteindre près de  $40 \text{ g m}^{-3}$ . Par ailleurs,  $M_g$  augmente avec la taille des bulles tant que celle-ci reste inférieure à 10 mm. Au-delà,  $M_g$  a tendance à stagner, voire à diminuer pour  $d_B > 10 \text{ mm}$  dans le cas d'un acier classique. Pour confirmer ce phénomène, il serait nécessaire de

quantifier les émissions de gouttes de film pour des tailles de bulles supérieures à 12 mm, ce que ne permet pas notre dispositif expérimental.



**Figure 3.65 :** Evolution des quantités de gouttes de film émises pour 1 m<sup>3</sup> de gaz injecté en fonction de la taille de la bulle

Sachant que les gouttes de film proviennent du film liquide formé par la bulle lorsque celle-ci atteint la surface du liquide, il est intéressant de comparer les résultats précédents aux caractéristiques du film et notamment à sa surface. La figure 3.66 montre l'évolution de la surface du film en fonction de la taille de la bulle, calculée à partir de la modélisation de Toba (1959) décrite au § III.2.1. La surface du film formé par une bulle parvenant à la surface du laitier liquide est quasiment similaire à celle obtenue dans le cas d'un acier liquide nu dans la gamme de taille étudiée ( $d_B$  compris entre 4 et 12 mm). En revanche, pour une même taille de bulle, le film est beaucoup plus étendu lorsque l'acier est riche en soufre, du fait de la diminution de la tension de surface.

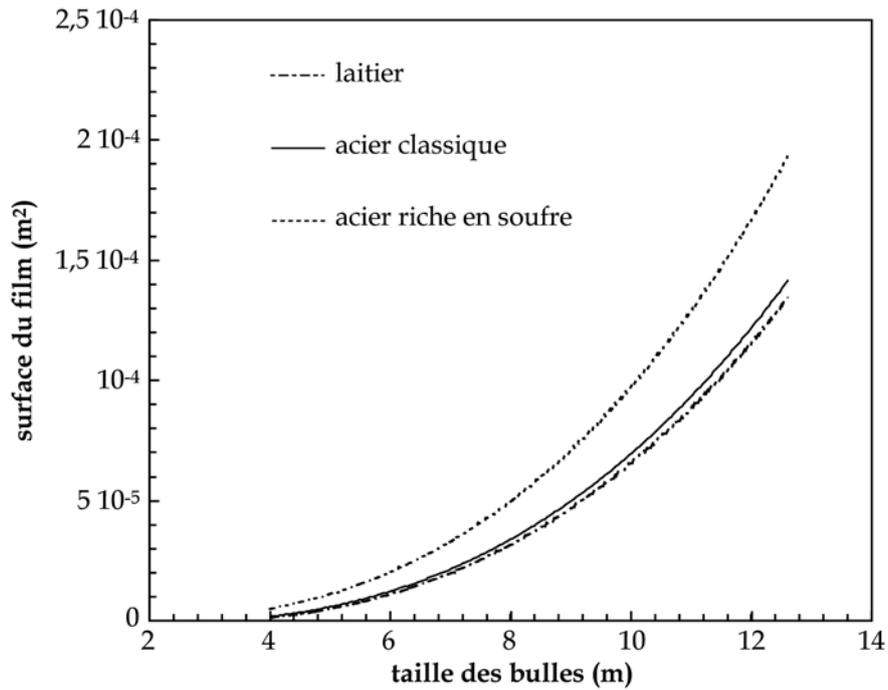


Figure 3.66 : Calcul de la surface du film en fonction de la taille de la bulle [d'après Toba (1959)]

La figure 3.67 décrit l'évolution de la masse de gouttes de film émises lors de l'éclatement d'une bulle ( $M_B$ ), en fonction de la surface du film formé par cette bulle, dans le cas d'un acier classique et dans le cas d'un acier riche en soufre.

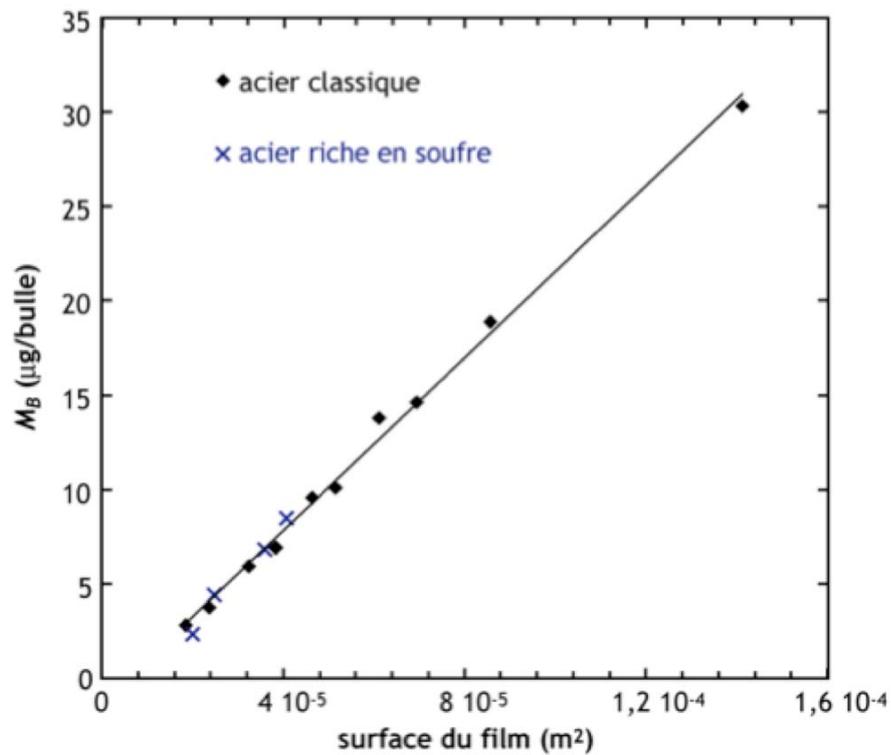


Figure 3.67 : Evolution de  $M_B$  en fonction de la surface du film

On constate que  $M_B$  augmente lorsque la surface du film augmente (celle-ci pouvant varier avec la taille de la bulle mais également avec l'ajout d'éléments tensioactifs dans le bain). Mais surtout, la figure 3.67 met en évidence l'existence d'une relation linéaire liant  $M_B$  à la surface du film. Les coefficients de cette relation ont été déterminés par régression linéaire. Avec  $M_B$  exprimée en  $\mu\text{g}$  et  $S_{\text{film}}$  en  $\text{m}^2$ , on obtient :

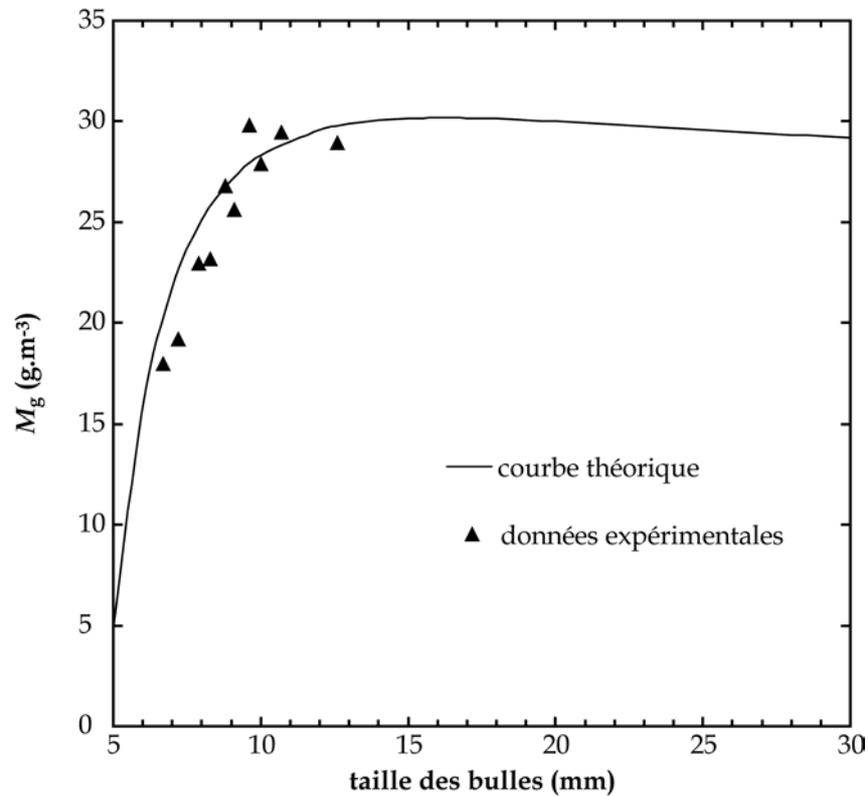
$$M_B = 0,2278 S_{\text{film}} - 10^{-6} \quad (3.32)$$

ce qui donne  $M_B = 0$  pour  $S_{\text{film}} \leq 4,39 \times 10^{-6} \text{ m}^2$ , soit  $d_B \leq 4,7 \text{ mm}$ .

Cette relation appelle quelques commentaires :

- La linéarité signifie bien sûr que la quantité de matière projetée sous forme de gouttes de film augmente proportionnellement à la surface du film. Ce résultat, qui satisfait l'intuition, est ici démontré par l'expérience (couplée aux calculs de la position d'équilibre de la bulle de Toba (1959)).
- L'abscisse non nulle à l'origine confirme l'existence d'une taille de bulle critique en-dessous de laquelle on ne forme plus de gouttes de film et fournit sa valeur dans le cas de l'acier liquide. Notons que ce résultat, observé dans le cas de l'eau et prédit par la théorie de Spiel (1998) supposant une rupture en un seul point, subsiste ici alors que nous avons observé qu'intervenait également un autre mode de rupture, en plusieurs points du film.
- Les résultats pour l'acier classique et pour l'acier riche en soufre sont identiques. Ceci montre que la proportionnalité entre quantité de matière projetée et surface émergée de la bulle traduit un effet purement géométrique, apparemment indépendant du liquide et de sa tension de surface. C'est là un résultat assez remarquable, qui peut être mis à profit pour calculer la masse des gouttes de film formées par l'éclatement d'une bulle.
- En supposant que toute la matière du film est transformée en gouttes de film, on peut calculer l'épaisseur moyenne du film à partir du volume de gouttes de film et de la surface du film. La valeur obtenue est proche de 30 nm, ce qui est inférieur à celles mesurées dans le cas de l'eau par Doubliez (1991) et supérieur à la valeur limite de 10 nm des « films noirs de Newton » (cf. § III.2.1).

A partir de la relation (3.32), on peut également déterminer l'évolution théorique de  $M_g$  en fonction de  $d_B$  et extrapoler ce résultat pour  $d_B > 12$  mm (voir figure 3.68). La courbe obtenue confirme la tendance donnée par les résultats expérimentaux dans le cas des grosses bulles :  $M_g$  atteint un maximum ( $30 \text{ g m}^{-3}$ ) pour  $d_B \sim 15$  mm, puis décroît très légèrement ( $M_g \sim 29,2 \text{ g m}^{-3}$  pour  $d_B = 30$  mm).



**Figure 3.68 :** Evolution théorique de  $M_g$  avec  $d_B$  calculée à l'aide de la relation 3.32 - Comparaison avec les résultats expérimentaux

### III.5. INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX ET EXTRAPOLATION AU CAS DU FOUR ELECTRIQUE

#### III.5.1. Formation des gouttes de jet

L'éclatement des bulles de gaz à la surface de l'acier liquide a été étudié en visualisant cet éclatement par vidéo rapide. Les images obtenues mettent en évidence l'émission de gouttes de jet selon un scénario similaire à celui observé dans le cas de l'eau : la cavité laissée à la surface après l'éclatement de la bulle se referme en provoquant l'impulsion d'un jet d'où peuvent se détacher une ou plusieurs gouttes de jet, la probabilité d'émission diminuant lorsque la taille de la bulle augmente. La majorité des gouttes de jet observées ne sont pas aspirées par le circuit de captage mais retombent dans le bain ou à proximité du creuset. A l'aide des séquences vidéo, nous avons pu déterminer le nombre de gouttes de jet

projetées par bulles de gaz et ainsi calculer une relation empirique reliant ce nombre à la taille de la bulle mère. L'ensemble des données obtenues montrent que le nombre de gouttes de jet augmente selon une loi exponentielle lorsque la taille de la bulle mère diminue. La caractérisation des gouttes de jet recueillies en fin de fusion nous a permis de déterminer leur taille moyenne, qui varie entre 12 et 18 % de la taille de la bulle mère. L'ensemble de ces résultats est en accord avec les valeurs obtenues dans le cas d'autres liquides.

La taille des bulles de CO qui se forment au four électrique n'est pas connue de manière précise mais l'on estime qu'elle peut varier entre 2 et 20 mm. En se basant sur les résultats obtenus à l'aide de notre dispositif expérimental, de telles bulles donnent naissance à des gouttes de jet dont la taille varie entre 240  $\mu\text{m}$  et 3,6 mm. Nous avons précédemment estimé que les vitesses de gaz à proximité du bain sont susceptibles de transporter des particules dont la taille n'excède pas 60  $\mu\text{m}$ . Dans ces conditions, les gouttes de jet ne peuvent être transportées dans le circuit de captage et participer à la formation des poussières. Il est probable que la majeure partie de ces gouttes retombent dans le bain après leur émission. La caractérisation des poussières de four électrique semble confirmer ce résultat puisque la plupart des particules observées ont une taille inférieure à 20  $\mu\text{m}$ . Des gouttes de jet de cette taille ne peuvent se former qu'à partir de bulles de taille inférieure à 160  $\mu\text{m}$ , dont la présence au four électrique est hautement improbable.

Par ailleurs, ces comparaisons supposent que l'éclatement des bulles de gaz a lieu à la surface d'un bain d'acier plat. En réalité, la surface du métal est presque entièrement recouverte d'une couche de laitier que l'on cherche à rendre moussant pour améliorer le rendement thermique du four. Or, dans le cas d'une mousse, l'éclatement d'une bulle correspond uniquement à la rupture du film et éventuellement à l'émission de gouttes de film. En présence d'un laitier moussant, la formation des gouttes de jet est alors limitée aux zones dégagées (impact de l'arc électrique et du jet d'oxygène), et les quantités émises peuvent a priori être considérées comme négligeables.

### **III.5.2. Rupture du film et formation des gouttes de film**

La rupture du film et la formation des gouttes de film ont été étudiées en exploitant les images obtenues par vidéo rapide. Grâce à un dispositif d'aspiration des poussières, les gouttes de film ont également été caractérisées in situ par un compteur de particules ou prélevées sur des filtres et caractérisées ultérieurement par granulométrie laser, MEB, BET, analyse gravimétrique...

L'utilisation de la vidéo rapide nous a permis de mettre en évidence les différentes étapes de la rupture du film formé par la bulle à la surface de l'acier liquide. Les images obtenues montrent l'existence de deux modes de rupture : en un seul point ou en plusieurs points du film. Lorsque la rupture s'amorce en un seul point du film, le trou ainsi formé s'agrandit et la matière du film s'accumule dans un bourrelet liquide qui apparaît sur les bords du trou ; ce bourrelet a tendance à se déstabiliser en formant des renflements d'où peuvent se détacher des gouttes de film. Ce mode de rupture, que nous appellerons mode I,

est similaire à celui décrit par Spiel (1998) pour le système air-eau. Lorsque la rupture a lieu en plusieurs points du film (mode II), les trous s'agrandissent rapidement, entraînant la formation d'un réseau de ligaments liquides semblables à ceux observés par Resch et al. (1986) lors de l'éclatement de bulles d'air à la surface de l'eau. En moins d'un dixième de millisecondes, les trous se rejoignent pour former un trou unique en éjectant les ligaments liquides. On retrouve ensuite un scénario similaire à celui décrit précédemment : agrandissement du nouveau trou avec formation d'un bourrelet, apparition d'instabilités et émission de gouttelettes.

L'observation de deux modes de rupture est un résultat original et inattendu puisque, comme Huber (2000), nous avons tendance à opposer les deux éventualités : rupture en un seul point ou simultanément en plusieurs points. Le point commun, s'il existe, est sans doute à chercher dans les instants qui précèdent la rupture. Dans le mode II, les différents points de rupture se forment dans une zone précise du film caractérisée sur nos images par une couleur grisée. Cette zone se développe à la surface du film peu avant la rupture. Il est probable qu'il s'agisse d'une zone de moindre épaisseur similaire à celle observée par Senée et al. (1999) sur les bulles de champagne. Dans le mode I, on retrouve également cette zone grisée mais celle-ci est beaucoup plus petite et n'apparaît sur les images vidéo qu'à des vitesses d'acquisition très élevées. En effet, la rupture s'amorce quelques microsecondes après la formation de la zone et celle-ci n'a donc pas le temps de s'étendre, contrairement aux cas où la rupture a lieu en plusieurs points. L'apparition de cette zone grisée préalable à la rupture n'avait, à notre connaissance, jamais été observée jusqu'ici.

Outre la mise en évidence de la zone grisée et des deux modes de rupture, l'utilisation de la vidéo rapide nous a permis de visualiser quelques formations de gouttes de film. Le pouvoir de résolution de la caméra étant limité, seules des gouttes de taille relativement élevée (supérieure à 100  $\mu\text{m}$ ) ont été observées. L'existence des gouttes plus fines a été mise en évidence indirectement grâce à la caractérisation par microscopie électronique et granulométrie laser des échantillons de poussières issus du dispositif expérimental. En l'absence de bullage, les particules prélevées proviennent de la vaporisation de la charge. Elles sont extrêmement fines, leur taille variant de quelques nm à plusieurs centaines de nm avec une taille moyenne avoisinant 30 nm. En présence de bullage, on constate l'apparition de particules plus grosses, sphéroïdales, dont la taille varie entre quelques centaines de nm et plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$ . Il s'agit de gouttes de film.

Les images obtenues par vidéo rapide montrent que les gouttes de film sont émises de deux manières :

- par désintégration des ligaments liquides qui se forment lorsque la rupture a lieu en plusieurs points ;
- par désintégration du bourrelet liquide qui se forme à la périphérie du trou et dans lequel s'accumule la matière du film.

Il est probable que, dans le premier cas, la formation des gouttelettes soit due au développement d'instabilités capillaires similaires à celles observées par Rayleigh le long d'un jet liquide tandis que dans le deuxième cas, elle obéisse à la théorie proposée par Spiel (1998) pour les systèmes air-eau (voir § III.2.1). Par une analyse théorique, celui-ci a montré que les gouttes de film issues du bourrelet sont émises lorsque la masse du bourrelet atteint

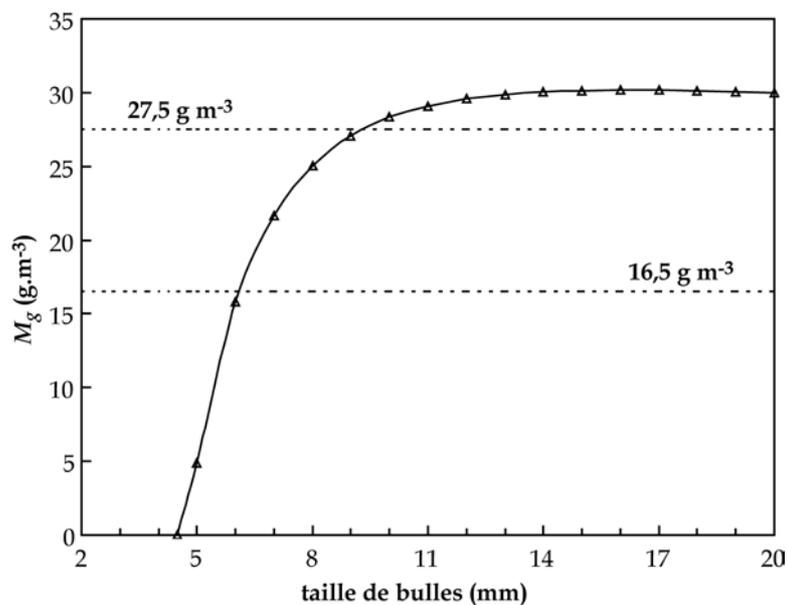
une valeur critique qui entraîne sa désintégration. En se basant sur un mode de rupture du film en un seul point, Spiel (1998) considère que la matière du film s'accumule dans le bourrelet au fur et à mesure de l'agrandissement du trou. Cette masse critique est donc atteinte lorsque le bourrelet a parcouru une distance suffisante correspondant selon son calcul à un angle de  $31,3^\circ$ . Ainsi lorsque la calotte sphérique que constitue le film forme un angle inférieur à  $31,3^\circ$ , il n'y a théoriquement aucune émission de gouttes de film. Dans le cas de l'eau, ce critère est atteint pour des bulles de 2,41 mm ce qui correspond aux résultats expérimentaux obtenus par Spiel (1998). Dans le cas de l'acier classique et du laitier, ce critère est atteint théoriquement pour des bulles de 4,4 mm.

Cette modélisation de la formation des gouttes de film est valable uniquement pour un mode de rupture en un seul point du film. Lorsque la rupture a lieu en plusieurs points, une partie de la matière du film est éjectée avant la formation du bourrelet. Il lui faut donc parcourir un angle plus grand avant de pouvoir atteindre la masse critique déterminée par Spiel (1998). Cet angle dépend de l'étendue de la zone grisée, ou zone de moindre épaisseur, dans laquelle se forment les points de rupture. En effet, le bourrelet apparaît quand les différents trous se rejoignent pour former un trou unique qui épouse généralement les contours de la zone grisée. Plus la surface occupée par la zone grisée est importante, plus la valeur de l'angle critique est élevée. Dans le cas d'une rupture en plusieurs points, la taille de la bulle en dessous de laquelle il n'y a pas désintégration du bourrelet est supérieure à celle calculée à partir du critère de Spiel (1998). Il peut néanmoins y avoir projection de gouttes de film lors de la désintégration du réseau de ligaments liquides qui se forment entre les différents trous de rupture. Le processus exact d'éjection de ces ligaments, de même que la projection de la matière issue du bourrelet, demeurent encore inaccessibles à l'observation pour une question de résolution. Par ailleurs, le rôle de la pression, de l'angle et de la vitesse initiale des projections ainsi que l'éventualité de projections secondaires restent à étudier.

Malgré la présence de ces deux modes d'émission, la quantification par analyse gravimétrique nous a permis de mettre en évidence l'existence, dans le cas de l'acier liquide, d'une taille de bulle critique, située entre 4,5 et 5 mm, en dessous de laquelle aucune goutte de film n'est détectée. Cette taille critique, remarquablement proche de la valeur prédite par la théorie de Spiel (1998), est la même pour un bain d'acier classique et pour un bain d'acier recouvert par une couche de laitier. Les analyses gravimétriques montrent également que la quantité de gouttes de film augmente avec la taille de la bulle mère, lorsque celle-ci est supérieure à la taille critique. Pour une même taille de bulle, la masse de gouttes de film augmente lorsqu'on ajoute un élément tensioactif tel que le soufre dans le bain d'acier. En revanche, l'ajout d'une couche de laitier ne modifie pas les quantités de gouttes émises. L'ensemble de ces phénomènes sont liés aux caractéristiques du film, et plus particulièrement à sa surface. En effet, nous savons grâce à la modélisation de Toba (1959) et de Unger et al. (1996) que la diminution de la tension de surface (provoquée par exemple par l'ajout de tensioactifs) entraîne une augmentation de la surface du film formé par la bulle, et donc une augmentation de la matière disponible pour la formation des gouttes de film. Lorsque la taille de la bulle augmente, on constate également une augmentation de la surface du film. Au contraire, les caractéristiques du film, et notamment sa surface, sont les mêmes lorsque la bulle évolue dans un laitier ou dans un acier classique. En associant cette modélisation à nos propres mesures, nous avons également pu mettre en évidence l'existence

d'une relation linéaire entre la masse de gouttes de film émises lors de l'éclatement d'une bulle et la surface du film formé par cette bulle.

A partir des résultats expérimentaux et en extrapolant la relation précédente, nous avons pu calculer la quantité de gouttes de film émise en fonction de la taille des bulles pour 1 m<sup>3</sup> de gaz injecté dans de l'acier liquide nu ou recouvert d'une couche de laitier. La figure 3.68 montre le résultat obtenu. Lorsque la taille de bulle est inférieure à 4,5 mm, la quantité de gouttes de film est négligeable voire nulle. Lorsque la taille des bulles est comprise entre 4,5 et 15 mm, la quantité de gouttes de film augmente continûment pour atteindre 30 g pour 1 m<sup>3</sup> de gaz injecté. Lorsque la taille des bulles est supérieure à 15 mm, la quantité de gouttes de film décroît légèrement. Au four électrique, les émissions de poussières sont comprises entre 15 et 25 kg par tonne d'acier produite. Par ailleurs, le dégagement de CO est évalué à 90 Nm<sup>3</sup> par tonne d'acier, soit 544 m<sup>3</sup> à la température de l'acier liquide. Si l'on considère que 60% des poussières proviennent de l'éclatement des bulles et sont donc des gouttes de film [Birat et al. (1998)], les émissions de gouttes de film au four électrique sont comprises entre 16,5 et 27,5 g m<sup>-3</sup>. Comme on peut le voir sur la figure 3.68, ces valeurs sont très proches des ordres de grandeur déduits de nos expériences de laboratoire et correspondent à des bulles dont la taille est comprise entre 6,1 et 9,3 mm. La projection de gouttes de film s'affirme donc comme le principal mécanisme d'émission de poussières au four électrique.



**Figure 3.68 :** Evolution de la masse de gouttes de film émises pour 1 m<sup>3</sup> de gaz injecté, en fonction de la taille des bulles ; comparaison avec les émissions au four électrique à arc

### III.6. CONCLUSIONS

L'éclatement des bulles, considéré comme la principale source d'émission de poussières au four électrique, a été longuement étudié dans le cas des systèmes air-eau. En revanche, dans le cas du métal liquide, les données disponibles sont extrêmement rares. En

se basant sur l'étude bibliographique présentée au début de ce chapitre, nous avons mis au point un dispositif expérimental original destiné à étudier les différentes étapes de l'éclatement d'une bulle dans l'acier liquide et à caractériser les projections qui en découlent. En arrivant à la surface du bain, la bulle soulève un film liquide qui se rompt en donnant naissance à de fines gouttelettes appelées gouttes de film. Nous avons pu filmer par vidéo rapide des séquences décomposant le processus d'éclatement qui n'avaient pu être observées dans le cas de l'eau. La cavité laissée à la surface se referme ensuite en provoquant l'impulsion d'un jet liquide d'où peuvent se détacher des gouttes appelées gouttes de jet. Ces dernières sont d'autant plus nombreuses que les bulles sont petites. Leur taille correspond à environ 15% de celle de la bulle mère. Au four électrique, de telles projections sont trop grosses pour être entraînées dans le circuit de captage et retombent presque toutes dans le bain. Seules les gouttes de film participent à la formation des poussières. Nous avons quantifié leur taille et leur masse en associant différentes techniques (prélèvement sur filtres, pesée, granulométrie, observation microscopique...). Leur taille varie entre quelques centaines de nm et une vingtaine de  $\mu\text{m}$ . Plus la bulle mère est grande, plus la masse de gouttes de film émise est élevée. Nous avons mis en évidence une relation linéaire entre la masse des projections et la surface du film de la bulle. Lorsque la taille des bulles est inférieure à 4,5 mm, aucune goutte de film ne se forme. Le contrôle de la taille des bulles de CO semble donc être un moyen efficace pour limiter les émissions de poussières au four électrique.



# Chapitre IV :

## Etude de l'évolution morphologique des poussières

### SOMMAIRE

---

<b>IV.1. Introduction.....</b>	<b>133</b>
IV.1.1. Terminologie employée.....	133
IV.1.2. Description générale d'un agglomérat.....	135
<b>IV.2. Description et mise en équation des mécanismes d'évolution morphologique.....</b>	<b>137</b>
IV.2.1. Transport des particules – Etablissement du bilan de population.....	137
IV.2.2. Description de l'agglomération.....	139
IV.2.3. Description du frittage et de la coalescence.....	141
IV.2.4. Description du dépôt par thermophorèse.....	145
IV.2.5. Conclusions.....	147
<b>IV.3. Modélisation de l'évolution morphologique.....</b>	<b>147</b>
IV.3.1. Présentation de la méthode de discrétisation.....	147
IV.3.3. Résolution et validation numérique du modèle.....	152
<b>IV.4. Détermination des paramètres du modèle.....</b>	<b>153</b>
IV.4.1. Détermination des paramètres de l'agglomération.....	153
IV.4.2. Détermination des paramètres du frittage.....	159
IV.4.3. Détermination des paramètres de la thermophorèse.....	160
IV.4.4. Détermination des données physiques.....	161
<b>IV.5. Exploitation du modèle – Influence des différents paramètres.....</b>	<b>162</b>
IV.5.1. Introduction.....	162
IV.5.2. Etude de cas académiques.....	162
IV.5.2. Application au cas du four électrique à arc.....	179
IV.5.3. Application au cas du convertisseur.....	193
<b>IV.6. Conclusions.....</b>	<b>198</b>

---

### IV.1. INTRODUCTION

#### IV.1.1. Terminologie employée

La description des phénomènes d'agglomération fait intervenir des termes qui ne sont pas toujours définis de la même façon selon les auteurs. Pour éviter toute ambiguïté, il

est nécessaire de préciser la terminologie que nous allons employer dans la suite de ce chapitre.

Le mot *particule* est certainement le terme le plus employé. Il sera utilisé de façon très générale pour désigner un élément de matière, individualisé ou non, tel qu'un agglomérat ou une particule discrète faisant partie d'un agglomérat. Il faut également préciser que le terme « diamètre de particules » employé sans plus de précision désigne le diamètre équivalent en volume de la particule considérée, c'est-à-dire le diamètre d'une sphère de même volume que la particule.

On appellera *particule primaire*, la brique constitutive de toutes les particules considérées, qu'elle soit cristallisée ou non. Dans le cas de la combustion d'un gaz (tel que Zn (gaz) au four électrique à arc), il s'agit souvent d'une molécule d'oxyde solide (ZnO). La particule primaire est à distinguer de la *particule discrète* qui désigne un élément individualisable constitutif d'un agglomérat.

L'*agrégat* ou *agglomérat dur* correspond à un assemblage de particules discrètes jointives par des surfaces liées entre elles par des forces iono-covalentes. La cohésion de l'ensemble est d'ordre physico-chimique et difficile à rompre (Norme Française N.F. X-11.630).

L'*agglomérat* ou *agglomérat mou* correspond à un assemblage plus labile de particules discrètes jointives par des surfaces liées entre elles par des forces physico-chimiques de surface (Norme Française N.F. X-11.630). Ces liaisons sont faciles à rompre par un moyen physique ou mécanique (agitation thermique ou hydrodynamique).

Le terme *coalescence* est souvent employé pour décrire à la fois le frittage et la coalescence elle-même. Dans notre étude, nous ne l'emploierons qu'au sens strict défini par la Norme Française N.F. X 44-001, à savoir l'action qui conduit des particules liquides à s'unir en particules plus volumineuses par un mécanisme de déformation visqueuse. Le terme *frittage*, quant à lui, désignera l'action qui conduit des particules solides à s'unir en particules plus volumineuses par des mécanismes de type diffusionnel.

Enfin on appellera *aérosol* un ensemble de particules dispersées en suspension dans une phase gazeuse. Sous l'influence des forces extérieures, ces particules peuvent subir un phénomène d'agglomération conduisant à la formation d'agglomérats. Si les particules discrètes constitutives des agglomérats sont soumises à des phénomènes de coalescence ou de frittage, ces agglomérats deviennent alors des agrégats qui peuvent atteindre la forme ultime d'une sphère.

## IV.1.2. Description générale d'un agglomérat

### *Cohésion d'un agglomérat*

La formation et la cohésion d'un agglomérat, dont dépend aussi sa morphologie, sont liées aux forces agissant sur et entre les particules. Ces forces peuvent être classées en deux catégories : les forces externes au système et les forces d'interaction. Les forces externes, qui gouvernent essentiellement les collisions entre particules, sont :

- l'énergie thermique qui résulte des collisions entre les particules et les molécules du gaz porteur et qui entraîne des phénomènes tels que le mouvement brownien des particules,
- les forces hydrodynamiques,
- les forces de gravitation et d'inertie dont le module est proportionnel à la masse de la particule (donc négligeables pour les petites particules).

Les forces d'interaction s'exerçant entre les particules jouent un rôle important dans la cohésion de l'agglomérat. Selon la nature des forces, elles peuvent favoriser ou empêcher l'adhésion des particules après leur collision. Les plus répandues sont :

- les forces de Van Der Waals : les molécules possèdent toutes un dipôle instantané créé par le mouvement de leurs électrons, ce dipôle génère un champ électrique qui polarise n'importe quel atome environnant, et y génère à son tour un dipôle induit ; l'interaction entre deux dipôles crée une force attractive instantanée ;
- les forces de répulsion de Born qui proviennent de l'interaction des nuages électroniques des atomes de surface de deux particules en contact ; elles sont fortement répulsives, mais n'agissent qu'à de très faibles distances ;
- les forces électriques qui peuvent résulter de la charge électrostatique des particules, on les évalue à partir de la loi de Coulomb ;
- les forces chimiques qui proviennent de liens chimiques entre les particules et qui peuvent contribuer à la cohésion d'un agglomérat, bien qu'elles agissent à très petite échelle.

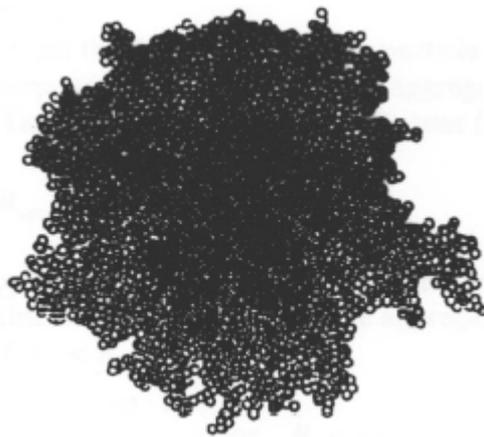
### *Morphologie*

Lorsque le frittage ou la coalescence ne sont pas suffisamment rapides, les agglomérats ne sont pas sphériques mais au contraire constitués d'un certain nombre de particules discrètes jointives. La morphologie des agglomérats est alors très irrégulière et leur diamètre de collision est largement supérieur au diamètre d'une sphère de même volume. Dans ce cas, il n'est plus possible d'utiliser le diamètre équivalent en volume pour caractériser l'agglomérat dans la description des phénomènes d'agglomération, les propriétés de transport étant très différentes par rapport à celles de particules sphériques. Pour tenir compte de la morphologie, on introduit dans la modélisation une dimension fractale caractéristique de l'agglomérat. Celle-ci varie entre 1 et 3 : plus l'agglomérat est compact, plus la dimension fractale est élevée. Le tableau 4.1 présente quelques exemples

caractéristiques de dimensions fractales, tandis que la figure 4.1 montre un agglomérat de dimension fractale  $D_f = 2,5$ .

**Tableau 4.1 :** Quelques exemples de dimensions fractales

Formes géométriques	$D_f$
Sphère ou particule compacte	3
Fine plaquette	2
Fibre	1



**Figure 4.1 :** Exemple d'agglomérat de dimension fractale  $D_f = 2,5$  [Hebrard (2004)]

A partir de la dimension fractale, on peut calculer le diamètre de collision de l'agglomérat d'après la relation proposée par Matsoukas et Friedlander (1991) :

$$d_c = d_{pd} \left( \frac{v}{v_{pd}} \right)^{\frac{1}{D_f}} = d_{pd} (n_{pd})^{\frac{1}{D_f}} \quad (4.1)$$

avec :  $d_c$  diamètre de collision de l'agglomérat (m)  
 $d_{pd}$  diamètre moyen des particules discrètes constituant l'agglomérat (m)  
 $v$  volume de l'agglomérat ( $m^3$ )  
 $v_{pd}$  volume moyen des particules discrètes constituant l'agglomérat ( $m^3$ )  
 $n_{pd}$  nombre moyen de particules discrètes constituant l'agglomérat.

Le diamètre moyen des particules discrètes et leur nombre peuvent être définis à partir du volume  $v$  et de la surface  $a$  de l'agglomérat :

$$d_{pd} = \frac{6v}{a} \quad (4.2)$$

$$n_{pd} = \frac{v}{v_{pd}} = \frac{6v}{\pi d_{pd}^3} = \frac{a^3}{36\pi v^2} \quad (4.3)$$

Le diamètre de collision de l'agglomérat vaut alors :

$$d_c = \frac{6v}{a} \left( \frac{a^3}{36\pi v^2} \right)^{\frac{1}{D_f}} \quad (4.4)$$

## IV.2. DESCRIPTION ET MISE EN EQUATION DES MECANISMES D'EVOLUTION MORPHOLOGIQUE

L'évolution morphologique des particules lors du captage des poussières au four électrique à arc est essentiellement gouvernée par deux phénomènes : l'agglomération et le frittage (ou coalescence) des particules. D'autres phénomènes peuvent également modifier la morphologie des poussières, tels que les réactions chimiques entre les particules ou entre les particules et le gaz. Faute de données sur les mécanismes impliqués dans ces réactions, nous n'en tiendrons pas compte dans le cadre de cette étude. Aux phénomènes d'agglomération et de frittage, il faut ajouter des phénomènes annexes tels que le dépôt de particules sur les parois des conduites, qui influencent indirectement l'évolution morphologique des poussières.

Dans cette partie, nous allons présenter en détail ces mécanismes et préciser, à partir de l'analyse bibliographique, les équations qui les régissent. La modélisation globale de l'évolution morphologique sera abordée dans le cadre de la théorie des bilans de population qui permet de décrire le transport des particules en phase dispersée.

### IV.2.1. Transport des particules - Etablissement du bilan de population

L'établissement du bilan de population nécessite l'introduction de quelques concepts permettant de décrire les particules contenues dans un aérosol : vecteur d'état des particules et de la phase continue, densité numérale de particules, vitesse d'évolution du vecteur d'état. A partir de ces concepts, il est possible d'adapter l'équation de Reynolds au cas des aérosols et ainsi d'obtenir l'équation de bilan de population qui décrit le transport des particules dans la phase continue. Pour ne pas alourdir ce chapitre, nous avons reporté dans l'annexe C1 l'essentiel de la présentation de ces notions et le cheminement qui conduit à l'écriture du bilan de population, que nous reprenons ci-dessous sous la forme générale proposée par Randolph et Larson (1971) :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} n \right) + \text{div}_r \left( \dot{\mathbf{R}} n \right) = H = B - D \quad (4.5)$$

Nous explicitons ci-dessous les notations et les termes de ce bilan et nous précisons leur signification :

- $\mathbf{r}$  et  $\mathbf{x}$  sont respectivement le vecteur position de la particule dans l'espace physique  $\Omega_r$  ( $\mathbf{r} \equiv (r_1, r_2, r_3)$  avec  $r_1, r_2, r_3$  coordonnées dites externes) et le vecteur des propriétés (volume, surface, composition...) qui donne le lieu de la particule dans l'espace des propriétés  $\Omega_x$  ( $\mathbf{x} \equiv (x_1, x_2, \dots, x_m)$  coordonnées internes constituées des  $m$  propriétés considérées). On appelle vecteur d'état de la particule l'ensemble  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  composé des coordonnées internes et externes.

- $n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t)$  est la fonction « densité numérale » de particules, telle que le nombre moyen de particules au lieu  $\mathbf{x}$  de l'espace des propriétés et  $\mathbf{r}$  de l'espace physique et au temps  $t$  dans un volume  $dV_x dV_r$  de l'espace d'état des particules est :

$$n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x dV_r \quad (4.6)$$

Quand on intègre la relation (4.6) sur l'espace des propriétés, on obtient la densité numérale locale ou nombre moyen de particules par unité de volume de l'espace physique, notée  $N(\mathbf{r}, t)$  :

$$N(\mathbf{r}, t) = \int_{\Omega_x} n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x \quad (4.7)$$

- $\dot{\mathbf{X}}$  et  $\dot{\mathbf{R}}$  représentent respectivement les vecteurs vitesse d'évolution des coordonnées internes et externes.  $\dot{\mathbf{R}}$  correspond donc au vecteur vitesse de la particule dans l'espace physique. La présence dans l'équation (4.5) du terme  $\text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} n \right)$  est une caractéristique du bilan de population par rapport aux équations de conservation classiques de la mécanique des milieux continus.
- $H$  représente la vitesse nette d'apparition des particules d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  ;  $B$  et  $D$  sont des termes sources qui traduisent respectivement l'apparition (« Birth ») et la disparition des particules d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$ .

La relation (4.5) est très générale et doit être adaptée afin de décrire simplement et efficacement le problème étudié. Dans les problèmes d'agglomération, on choisit généralement de décrire la taille des particules. La divergence par rapport à l'espace des propriétés représente alors la croissance ou le rétrécissement de ces particules tandis que le bilan de population, qui est une équation de conservation, rend compte de l'évolution avec le temps de la distribution de taille des particules. Or, cette évolution exprimée en termes de diamètre équivalent n'étant pas additive (une particule de diamètre  $d_1$  s'associant avec une particule de diamètre  $d_2$  ne forme pas une particule de diamètre  $d_1 + d_2$ ), il est préférable de caractériser la taille des particules à l'aide de leur volume, qui est un paramètre additif et indépendant de la forme des particules. Les termes de disparition et d'apparition décrivent

des évènements discrets extrêmement rapides par rapport à l'échelle de temps considérée. Dans notre cas, ces évènements correspondent aux phénomènes de transfert de particules entre les différentes classes de volume par agglomération. Afin de simplifier l'équation (4.5) pour pouvoir l'utiliser dans le cadre de notre étude, nous faisons les hypothèses suivantes :

- la propriété intrinsèque retenue est le volume des particules ( $\mathbf{x} \equiv v$ ) ;
- le régime est permanent :

$$\frac{\partial n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad (4.8)$$

- l'agglomération est ici le seul phénomène entraînant une modification du volume des particules, les variations de volume qui lui sont associées sont de type *discret* et non *continu* :

$$\dot{\mathbf{X}} = 0 \quad (4.9)$$

- le déplacement des particules est uni-directionnel et suivant  $z$ , on assimile la vitesse des particules à la vitesse du gaz  $U_{gaz}$ .

Le bilan de population s'écrit alors :

$$\frac{\partial}{\partial z} (n U_{gaz}) = B - D \quad (4.10)$$

## IV.2.2. Description de l'agglomération

### *Définition*

L'agglomération est le processus par lequel deux particules entrent en collision et adhèrent l'une à l'autre pour former une nouvelle particule. Ce phénomène entraîne l'augmentation *discrète* de la taille des particules et la diminution de la concentration particulaire de l'aérosol, sans affecter la conservation de la masse et du volume de particules.

La collision est gouvernée majoritairement par les forces extérieures et résulte du mouvement des particules dans des directions différentes et à des vitesses différentes. Ce mouvement peut avoir pour origine la diffusion brownienne, l'inertie, l'agitation, le cisaillement, la turbulence, etc., mais dépend en grande partie de la taille des particules. Par exemple, le mouvement brownien est typiquement prépondérant pour des tailles de particules inférieures à 1  $\mu\text{m}$ . Au contraire, la turbulence affecte uniquement les particules de plus grande taille ( $> 1 \mu\text{m}$ ).

Après collision, la formation de l'agglomérat est conditionnée par l'adhésion des particules qui dépend de l'existence de forces d'interaction attractives entre les particules. En fonction des liaisons qui unissent les particules, on obtient des agglomérats plus ou moins fragiles (voir définitions, § IV.1) dont la morphologie varie de l'assemblage de particules discrètes (par exemple de type fractal) à la sphère lorsque les particules discrètes ont complètement coalescé.

Dans le cas des poussières de four électrique à arc, les mécanismes d'agglomération dont nous devons tenir compte, sont les suivants :

- l'agglomération par mouvement brownien,
- l'agglomération turbulente,
- l'agglomération par sédimentation différentielle (agglomération de particules ayant des vitesses de chute différentes).

Quel que soit le mécanisme envisagé, l'agglomération est contrôlée par trois éléments déterminants [Sastry et Lofftus (1990)]. Le premier de ces éléments est le nombre d'interactions possibles entre les sites ou particules du système considéré, qui dépend de la mobilité des sites et de leur nombre. Le second élément correspond à la fréquence avec laquelle ces interactions ont lieu, qui dépend de l'énergie (interne et appliquée du système). Le troisième élément est l'efficacité des interactions. La détermination de ces trois éléments est indispensable à la modélisation du phénomène.

### *Formulation mathématique*

L'agglomération qui entraîne la formation de nouvelles particules à partir de particules de plus petite taille, apparaît dans le bilan de population sous la forme de termes sources d'apparition et de disparition. L'apparition d'une particule de volume  $v$  est ainsi associée à la disparition de deux particules de volume inférieur. La vitesse d'apparition est, conformément aux remarques précédentes, proportionnelle à la fréquence d'agglomération et au nombre de paires de particules de volume inférieur. Inversement, la disparition des particules de volume  $v$  résulte de leur agglomération avec n'importe quelle autre particule. Le calcul des vitesses d'apparition et de disparition repose sur ces hypothèses et quelques considérations statistiques simples. Smoluchowski (1917) fut un des premiers à le présenter et son nom est aujourd'hui associé au bilan de population qui traduit l'évolution de la densité numérale de particules par agglomération. Pour une population de particules réparties de manière uniforme dans un volume fermé, ce bilan s'écrit :

$$H = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v', v-v') n(v', t) n(v-v', t) dv' - \int_0^\infty \beta(v', v) n(v', t) n(v, t) dv' \quad (4.11)$$

avec :  $n(v, t)$  densité de particule de volume  $v$  à l'instant  $t$  (nb. part m<sup>-6</sup>)  
 $\beta(v, v')$  noyau d'agglomération entre une particule de volume  $v$  et une particule de volume  $v'$  (m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>)

Les deux termes de droite sont les termes  $B$  et  $D$  de l'équation générale (4.5), calculés dans le cas de l'agglomération. L'ensemble du raisonnement conduisant à cette équation est présenté en annexe C2.

### IV.2.3. Description du frittage et de la coalescence

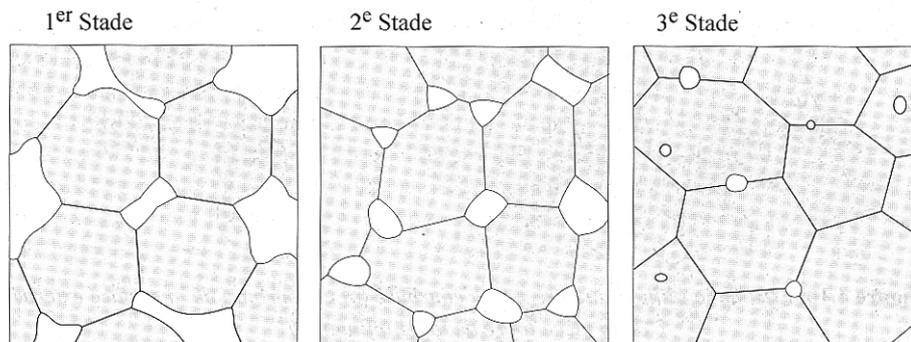
#### Définitions

Le frittage est un phénomène naturel qui peut se produire dès lors que des particules solides sont en contact. On peut le définir comme un transport de matière, activé par la température, dans une poudre ou un compact poreux et caractérisé par :

- la diminution de la surface spécifique par croissance des contacts entre les particules ;
- la diminution du volume et l'évolution géométrique des pores.

La force motrice principale du frittage est la minimisation de l'énergie interfaciale de l'agglomérat liée à la réduction de sa surface spécifique. Lorsque le frittage est total, l'agglomérat passe d'un ensemble de particules discrètes peu compact à une sphère unique. La vitesse du phénomène dépend essentiellement de la température, des propriétés physico-chimiques et de la taille des particules. D'autres forces motrices (d'origine chimique par exemple) peuvent également agir en parallèle dans des cas spécifiques que nous n'aborderons pas au cours de notre étude.

Deux types d'interface contribuent à l'énergie interfaciale d'un agglomérat : les interfaces solide-gaz et les interfaces solide-solide (joints de grains). Au début du processus de frittage, l'énergie interfaciale diminue par la formation de joints de grains entre particules, c'est-à-dire par le remplacement d'interfaces solide-gaz par des interfaces solide-solide, qui sont dans la plupart des cas moins énergétiques. La formation des joints de grains s'accompagne ensuite d'une croissance des grains qui tend à réduire l'étendue des joints de grains et donc à diminuer l'énergie interfaciale. La figure 4.2 et le tableau 4.2 illustrent ce phénomène.



**Figure 4.2 :** Représentation schématique des trois stades de frittage [Bouvard (2002)]

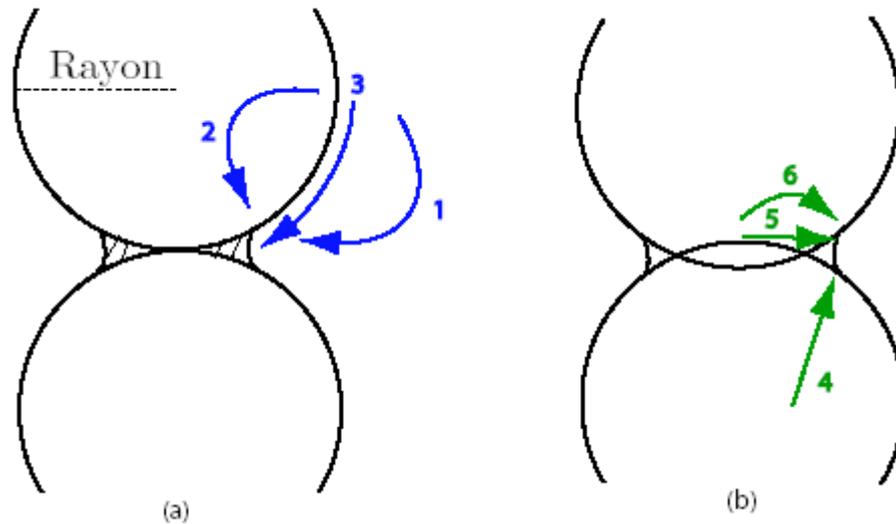
**Tableau 4.2 :** Etapes successives du frittage [Bernache-Assolant (1993)]

Etape	Processus	Perte de surface	Densification	Grossissement
Adhésion	Formation d'un contact	Faible	Aucune	Aucun
Initiale	Croissance des ponts	Significative (jusqu'à 50% de perte)	Faible au début	Faible
Intermédiaire	Arrondissement et élongation des pores	Disparition presque totale de la porosité ouverte	Significative	Augmentation de la taille des grains
Finale	Fermeture des pores, densification finale	Négligeable	Lente et relativement faible	Croissance des grains

La matière nécessaire à la formation des joints de grains et à la croissance des grains est apportée par des mécanismes de type diffusionnel. Hebrard (2004) distingue deux types de frittage selon la source dont est issue l'apport de matière (voir figure 4.3) :

- lorsque la matière provient de la surface des grains par diffusion superficielle (notée 3), par évaporation/diffusion gazeuse (1) ou par diffusion en volume (2), on parle de frittage à densité constante, les grains qui étaient tangents au départ le restent ;
- si en revanche la matière provient du centre des joints de grains ou du centre des grains (diffusion par joints de grains (5), diffusion en volume (4, 6)), la cohésion impose que peu à peu les centres se rapprochent, il y a à la fois consolidation et retrait.

Lorsque les particules ne sont pas solides mais liquides ou visqueuses, un autre phénomène similaire au frittage peut intervenir, il s'agit de la coalescence des particules. Comme pour le frittage, la coalescence est liée à la minimisation de l'énergie interfaciale, qui tend à diminuer la surface de l'agglomérat par croissance des contacts entre les particules. En revanche, ce phénomène ne fait pas intervenir des mécanismes de type diffusionnel, il se produit par déformation visqueuse.



**Figure 4.3 :** Chemins de diffusion entre la surface des grains et le pont de raccordement au cours du frittage de deux sphères [Hebrard (2004)]

### *Formulation mathématique*

Pour modéliser le frittage ou la coalescence d'un agglomérat constitué de deux particules sphériques, on distingue généralement trois étapes (voir figure 4.4) :

- étape préliminaire : formation d'un pont entre les deux particules,
- étape intermédiaire : croissance du pont,
- étape finale : les deux particules sont complètement frittées et forment une seule particule de forme sphérique.

En suivant l'évolution du rayon du pont dans le cas de la coalescence par déformation visqueuse, Hiram et Nir (1983) ont calculé la forme asymptotique de la loi de frittage :

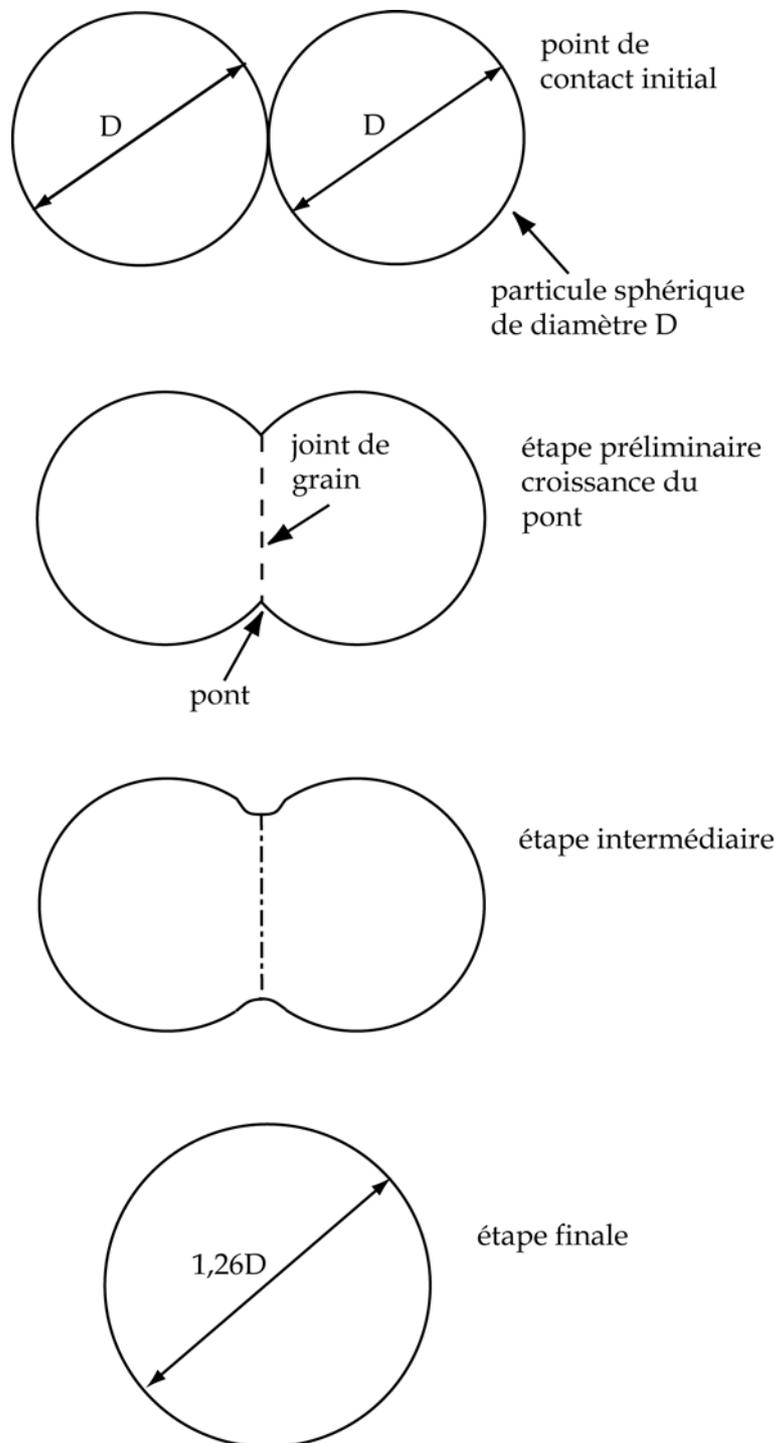
$$\frac{da}{dt} \simeq -\frac{1}{\tau_c}(a - a_s) \quad (4.12)$$

avec  $a$  : surface de l'agglomérat ( $m^2$ )  
 $a_s$  : surface de la sphère de même volume que l'agglomérat ( $m^2$ )  
 $\tau_c$  : temps caractéristique de coalescence (s)

Cette expression a été établie pour  $t > \tau_c$ , en supposant que les deux particules qui fusionnent restent sphériques. Par la suite, elle a été extrapolée à l'ensemble des étapes de la coalescence par déformation visqueuse [Koch et Friedlander (1990)] et du frittage par diffusion solide [Friedlander et Wu (1994)].

Kruis et al. (1993) et Friedlander et Wu (1994) ont également étendu l'équation aux cas des agglomérats de particules quasi-sphériques. D'autres modèles existent, basés

notamment sur la partition de l'agglomérat en groupes de particules primaires qui frittent indépendamment les uns des autres et auxquels on applique l'équation (4.12) [Lehtinen et al. (1996), Johannessen et al. (2000)], mais la première approche est aujourd'hui la plus utilisée.

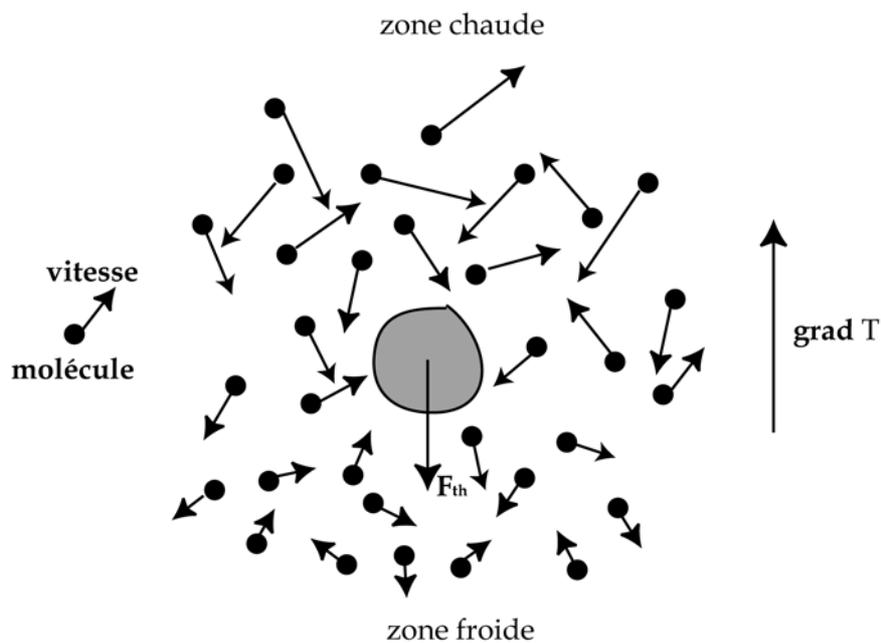


**Figure 4.4 :** Etapes d'un modèle de frittage à deux sphères [d'après German (1996)]

#### IV.2.4. Description du dépôt par thermophorèse

##### *Définition*

L'existence de gradients thermiques au sein de la phase gazeuse d'un aérosol entraîne le déplacement des particules des zones chaudes vers les zones plus froides du système. Ce phénomène que l'on appelle thermophorèse conduit notamment à la formation de dépôts sur les parois refroidies des réacteurs et des conduites d'aspiration. Le mouvement des particules sous l'effet d'un gradient de température a été mis en évidence pour la première fois par Tyndall (1870), puis par Aitken (1884) dont les travaux montrent que la thermophorèse est engendrée par les collisions entre les molécules du gaz porteur et les particules. Comme le montre la figure 4.5, les molécules provenant de la zone chaude possèdent une énergie cinétique plus élevée que celle provenant de la zone froide. Il y a donc un transfert inégal de quantité de mouvement du flux de molécules à la particule qui induit une force dite de thermophorèse ( $F_{th}$ ). Cette force qui s'applique à la particule est dirigée de la zone chaude vers la zone froide et dépend du gradient thermique régnant dans le fluide ainsi que des propriétés physiques du gaz et de la particule (températures, conductivités thermiques, viscosité du gaz, taille de la particule).



**Figure 4.5 :** Schéma d'une particule en suspension dans un gaz où règne un gradient thermique ( $F_{th}$  : force de thermophorèse)

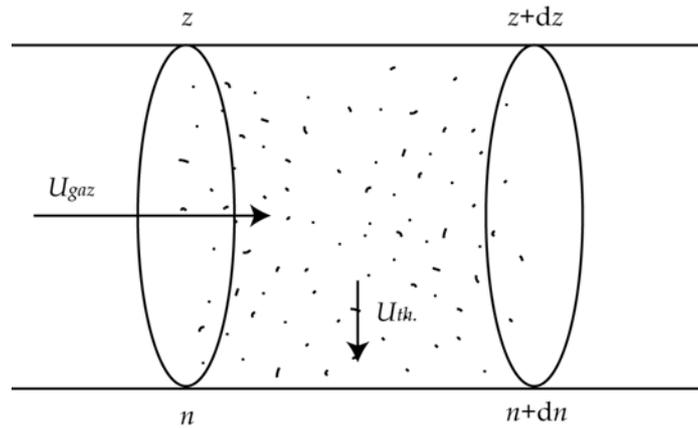
##### *Formulation mathématique*

Pour modéliser le mouvement des particules par thermophorèse, on introduit dans le bilan de population une vitesse de thermophorèse  $U_{th}$  qui correspond à la vitesse des

particules soumises à la force de thermophorèse. Cette vitesse vient s'ajouter à la vitesse du gaz porteur  $\mathbf{U}_{\text{gaz}}$  dans l'équation (4.5) :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} n \right) + \text{div}_r \left( \left( \mathbf{U}_{\text{gaz}} + \mathbf{U}_{\text{th.}} \right) n \right) = B - D \quad (4.13)$$

La plupart des études dans lesquelles cette formulation est employée concernent la description fine des mouvements de particules et ne prennent pas en compte les phénomènes d'interactions inter-particulaires. Dans notre cas, nous cherchons surtout à étudier l'évolution morphologique des particules qui n'est affectée que de façon indirecte par la thermophorèse (formation de dépôts sur les parois qui entraîne une diminution de la densité de particules). En régime permanent, il est possible de simplifier l'expression en décrivant le dépôt des particules par thermophorèse sous la forme d'un terme source de disparition [Romay et al. (1998), Nishio et al. (1974), Byers et Calvert (1969)] que nous noterons  $D_{\text{th.}}$ . Ce terme s'obtient en appliquant la conservation du nombre de particules à un volume élémentaire de fluide dans la conduite d'aspiration (voir figure 4.6).



**Figure 4.6 :** Schéma d'un élément de fluide

On considère que, dans le volume  $\Delta V = \frac{\pi D_c^2}{4} dz$  (où  $D_c$  correspond au diamètre de la conduite), le nombre de particules n'évolue que suite au dépôt sur la paroi interne de la conduite, de surface  $\Delta S = \pi D_c dz$ . Les particules arrivent sur cette paroi par thermophorèse à la vitesse radiale  $U_{\text{th.,paroi}}$ . Le bilan numéral s'écrit alors :

$$\int_{\Delta V} \text{div}_r \left( \left( \mathbf{U}_{\text{gaz}} + \mathbf{U}_{\text{th.}} \right) n \right) dV = \int_{\Delta S} U_{\text{th.,paroi}} n dS = \int_{\Delta V} D_{\text{th.}} dV \quad (4.14)$$

D'où en considérant  $n$  et  $D_{\text{th.}}$  comme uniformes dans tout le volume  $\Delta V$ ,

$$D_{\text{th.}} = \frac{U_{\text{th.,paroi}} n \Delta S}{\Delta V} = \frac{4 n(v, z)}{D_c} U_{\text{th.,paroi}} \quad (4.15)$$

## IV.2.5. Conclusions

A l'aide des bilans de population introduits au début de cette partie, nous avons obtenu un système de deux équations décrivant l'évolution morphologique des particules. Ce système est composé d'une part de l'équation modélisant la variation de la densité numérale de particules sous l'effet de l'agglomération et du dépôt des particules par thermophorèse, et d'autre part d'une équation modélisant l'évolution de la surface des agglomérats par frittage et/ou coalescence :

$$\frac{d}{dz}(n(v, z)U_{gaz}) = U_{gaz} \frac{dn(v, z)}{dz} + n(v, z) \frac{dU_{gaz}}{dz} = B_{agg.} - D_{agg.} - D_{th.} \quad (4.16)$$

$$B_{agg.} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v', v-v') n(v', z) n(v-v', z) dv' \quad (4.17)$$

$$D_{agg.} = \int_0^\infty \beta(v', v) n(v', z) n(v, z) dv' \quad (4.18)$$

$$D_{th.} = \frac{4n(v, z)}{D_c} (U_{th.})_{paroi} \quad (4.19)$$

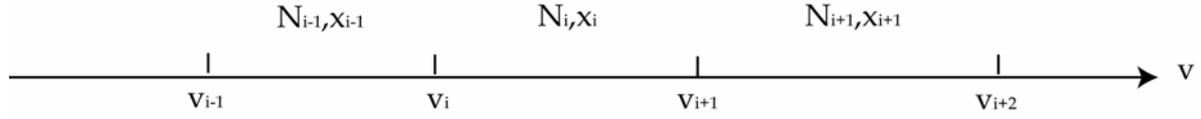
$$\left. \frac{da}{dt} \right|_{frittage} \simeq -\frac{1}{\tau_c} (a - a_s) \quad (4.20)$$

## IV.3. MODELISATION DE L'EVOLUTION MORPHOLOGIQUE

### IV.3.1. Présentation de la méthode de discrétisation

#### *Modèle à sections*

Pour être en mesure de résoudre le système d'équations établi précédemment sur une large gamme de taille de particules, nous avons choisi un modèle de résolution « à sections » basé sur un maillage de l'espace des volumes de particules en intervalles  $[v_i, v_{i+1}]$  appelés sections (voir figure 4.7). La principale hypothèse de ce type de modèle consiste à considérer que toutes les particules d'une même section ont un volume identique ce qui permet d'attribuer à chaque section un volume représentatif  $x_i$ . Cette approximation a des conséquences sur la précision du calcul qui peut être améliorée en affinant la discrétisation de l'espace.



**Figure 4.7 :** Discretisation de l'espace des volumes de particules en sections de volume représentatif  $x_i$

Pour obtenir une formulation discrète du bilan de population, on intègre la relation continue sur l'intervalle  $[v_i, v_{i+1}]$  :

$$U_{gaz}(z) \frac{dN_i(z)}{dz} = \frac{1}{2} \int_{v_i}^{v_{i+1}} dv \int_0^v \beta(v', v-v') n(v', z) n(v-v', z) dv' - \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v, z) dv \int_0^\infty \beta(v', v) n(v', z) dv' \quad (4.21)$$

$$- \frac{4N_i(z)}{D_c} U_{th.,paroi} - N_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz}$$

$$N_i(z) = \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v, z) dv \quad (4.22)$$

avec :  $N_i(z)$  densité numérique moyenne de particules dans la classe  $i$  (ou section  $[v_i, v_{i+1}]$ ) (part  $m^{-3}$ )

On obtient alors un nouveau système d'équations, dans lequel le nombre de variables indépendantes est supérieur au nombre d'équations. Pour résoudre le système, il est donc nécessaire de le transformer en un système d'équations fermé en exprimant  $n(v, z)$  en fonction des variables  $N_i$  seules. La littérature propose plusieurs méthodes pour y parvenir. Il s'agit soit d'écrire de diverses manières le théorème de la moyenne, soit d'appliquer le principe de conservation de deux propriétés. C'est cette dernière approche, développée par Kumar et Ramkrishna (1996), que nous avons retenue. L'idée est, lors de la discrétisation des termes d'agglomération, d'attribuer à la population de volume représentatif  $x_i$  une fraction des particules apparaissant dans l'intervalle  $[x_{i-1}, x_i]$  et une fraction de celles apparaissant dans l'intervalle  $[x_i, x_{i+1}]$ . Ces fractions sont calculées pour préserver exactement le nombre et le volume des particules. L'annexe C3 décrit le principe de chacune de ces méthodes et donne le détail des calculs pour celle de Kumar et Ramkrishna (1996).

### *Représentation de l'agglomération*

Considérons une classe  $i$  quelconque, l'apparition et la disparition de particules par agglomération dans cette classe sont modélisées par deux termes source (respectivement  $B_{agg.,i}$  et  $D_{agg.,i}$ ) :

$$B_{agg,i} = \frac{1}{2} \int_{v_i}^{v_{i+1}} dv \int_0^v \beta(v', v-v') n(v', z) n(v-v', z) dv' \quad (4.23)$$

$$D_{agg,i} = \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v, z) dv \int_0^\infty \beta(v', v) n(v', z) dv' \quad (4.24)$$

Pour déterminer les expressions discrétisées de chacun de ces termes, on écrit d'une part, puisque la population de particules est supposée être concentrée à des volumes représentatifs, la densité numérique de particules sous la forme :

$$n(v, z) = \sum_{k=1}^M N_k \delta(v - x_k) \quad (4.25)$$

avec :  $\delta$  fonction de Dirac.  
 $M$  nombre total de sections.

et on applique, d'autre part, la méthode de répartition entre classes présentée à l'annexe C3. On obtient alors pour le terme d'apparition de particules :

$$B_{agg,i} = \sum_{\substack{j,k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}}^{j \geq k} \left( 1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k} \right) \eta \beta_{j,k} N_j(z) N_k(z) \quad (4.26)$$

$$\eta = \begin{cases} \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i}, & \text{si } x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{v - x_{i-1}}{x_i - x_{i-1}}, & \text{si } x_{i-1} \leq v \leq x_i \end{cases} \quad \text{avec } v = x_j + x_k \quad (4.27)$$

$$\beta_{j,k} = \beta(x_j, x_k) \quad (4.28)$$

avec :  $\delta_{j,k}$  symbole de Kronecker.

Le terme de disparition des particules s'écrit plus simplement :

$$D_{agg,i} = N_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) \quad (4.29)$$

Lorsque l'agglomération est le seul phénomène d'évolution morphologique, la variation du nombre de particules dans la classe  $i$  s'écrit donc finalement :

$$\begin{aligned}
U_{gaz} \frac{dN_i(z)}{dz} \Big|_{\text{agg.}} &= \sum_{\substack{j \geq k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta \beta_{j,k} N_j(z) N_k(z) \\
&- N_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) - N_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz} - \frac{4N_i(z)}{D_c} (U_{th})_{\text{paroi}}
\end{aligned} \tag{4.30}$$

Outre le nombre de particules par classe, nous nous intéressons également à leur volume. Notons  $V_i$  la concentration volumique de la classe  $i$  (volume total des particules de la classe  $i$  par  $\text{m}^3$  de gaz) :

$$V_i(z) = x_i N_i(z) \tag{4.31}$$

Sachant que les volumes représentatifs de chaque section sont fixes, l'évolution de la concentration volumique de la classe  $i$  s'écrit :

$$\begin{aligned}
U_{gaz} \frac{dV_i}{dz} \Big|_{\text{agg.}} &= U_{gaz} x_i \frac{dN_i}{dz} \Big|_{\text{agg.}} = \sum_{\substack{j \geq k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_i}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) x_i \frac{v}{x_i} \left( \frac{x_{i-1} - 1}{v} \right) \beta_{j,k} N_j(z) N_k(z) \\
&+ \sum_{\substack{j \geq k \\ x_i < (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) x_i \frac{v}{x_i} \left( \frac{x_{i+1} - 1}{v} \right) \beta_{j,k} N_j(z) N_k(z) \\
&- x_i N_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) - x_i N_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz} - \frac{4x_i N_i(z)}{D_c} (U_{th})_{\text{paroi}}
\end{aligned} \tag{4.32}$$

$$\begin{aligned}
U_{gaz} \frac{dV_i}{dz} \Big|_{\text{agg.}} &= \sum_{\substack{j \geq k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta' \beta_{j,k} (N_j(z) V_k(z) + N_k(z) V_j(z)) \\
&- V_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) - V_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz} - \frac{4V_i(z)}{D_c} (U_{th})_{\text{paroi}}
\end{aligned} \tag{4.33}$$

$$\eta' = \begin{cases} \frac{x_{i-1} - 1}{v}, & \text{si } x_{i-1} \leq v \leq x_i \\ \frac{x_{i-1} - 1}{x_i} \\ \frac{x_{i+1} - 1}{v}, & \text{si } x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{x_{i+1} - 1}{x_i} \end{cases} \tag{4.34}$$

D'après Vermury et al. (1994) et Tsantilis et al. (2002), volume et surface sont équivalents lorsque l'agglomération est le seul phénomène d'évolution morphologique. A

partir des équations (4.33) et (4.34), on peut donc obtenir un système d'équations analogue décrivant l'évolution de la concentration surfacique d'une classe de particules ( $A_i$  : aire totale des particules de la classe  $i$  par  $m^3$  de gaz) :

$$U_{gaz} \frac{dA_i}{dz} \Big|_{agg.} = \sum_{\substack{j,k \\ x_{i-1} \leq (x_j+x_k) \leq x_{i+1}}}^{j \geq k} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta' \beta_{j,k} (N_j(z) A_k(z) + N_k(z) A_j(z)) - A_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) - A_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz} - \frac{4A_i(z)}{D_c} (U_{th})_{paroi} \quad (4.35)$$

### Représentation du frittage et de la coalescence

Comme nous l'avons vu précédemment, le frittage et la coalescence n'affectent ni le nombre d'agglomérats, ni le volume des agglomérats. En revanche, les deux phénomènes entraînent une modification de la surface des particules décrite à l'aide de l'équation suivante :

$$\frac{da}{dt} \Big|_{frittage} \simeq -\frac{1}{\tau_c} (a - a_s) \quad (4.36)$$

avec :  $a$  la surface d'un agglomérat de volume  $v$  ( $m^2$ )  
 $a_s$  la surface d'une sphère de volume  $v$  ( $m^2$ )

Pour l'intégrer au modèle, il est nécessaire de discrétiser cette équation et de l'exprimer en termes de concentration surfacique de particules. Soit  $a_i$  la surface d'un agglomérat de volume  $x_i$ , la concentration surfacique des particules d'une classe  $i$  s'écrit :

$$A_i(z) = N_i(z) a_i(z) \quad (4.37)$$

Sachant que le frittage et la coalescence n'influencent pas le nombre d'agglomérats et en considérant des évolutions spatiales plutôt que temporelles, on a :

$$\frac{d(U_{gaz} A_i)}{dz} \Big|_{frit./coal.} = N_i \frac{d(U_{gaz} a_i)}{dz} \Big|_{frit./coal.} = N_i \left[ -\frac{1}{\tau_{c,i}} (a_i - a_{s,i}) \right] \quad (4.38)$$

$$\frac{d(U_{gaz} A_i)}{dz} \Big|_{frit./coal.} = -\frac{1}{\tau_{c,i}} (A_i - N_i a_{s,i}) \quad (4.39)$$

avec :  $\tau_{c,i}$  temps caractéristique de frittage de la classe  $i$  (s)  
 $a_{s,i}$  la surface d'une sphère de volume  $x_i$  ( $m^2$ )

### Récapitulation des équations du modèle

Pour caractériser l'évolution lors de leur transport d'une population de particules distribuées selon leur volume, sous l'effet de l'agglomération, du frittage et de la coalescence, nous avons déterminé le système d'équations suivant, qui décrit l'évolution de la concentration numérale, volumique et surfacique des particules :

$$\frac{dN_i(z)}{dz} = \frac{1}{U_{gaz}} \left( \begin{array}{l} \sum_{\substack{j \geq k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta \beta_{j,k} N_j(z) N_k(z) - N_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) \\ \text{agglomération des particules} \\ - N_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz} - \frac{4N_i(z)}{D_c} (U_{th})_{\text{paroi}} \\ \text{dépot par thermophorèse} \end{array} \right) \quad (4.40)$$

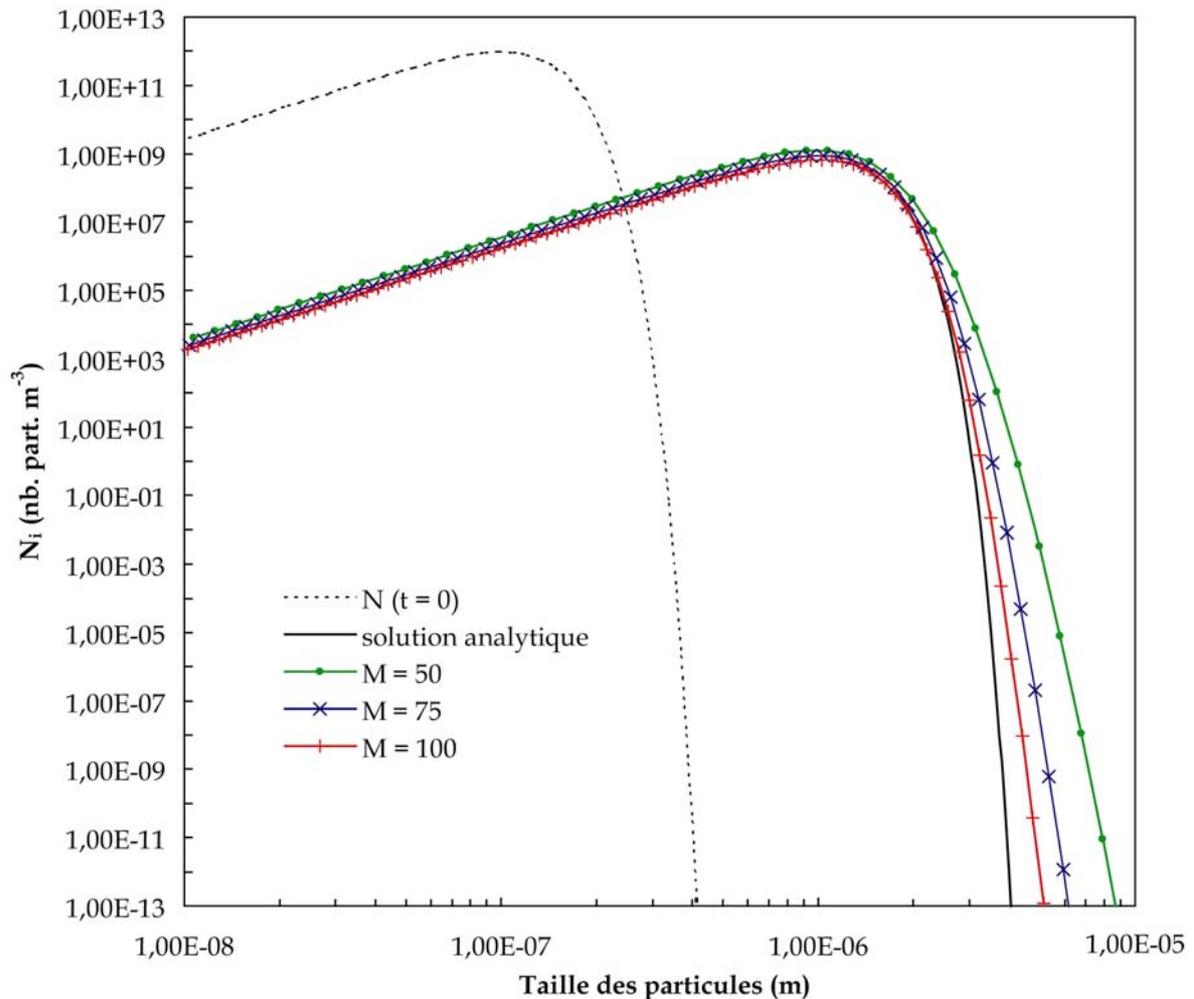
$$\frac{dV_i(z)}{dz} = \frac{1}{U_{gaz}} \left( \begin{array}{l} \sum_{\substack{j \geq k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta' \beta_{j,k} (N_j(z) V_k(z) + N_k(z) V_j(z)) \\ - V_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) - V_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz} - \frac{4V_i(z)}{D_c} (U_{th})_{\text{paroi}} \end{array} \right) \quad (4.41)$$

$$\frac{dA_i(z)}{dz} = \frac{1}{U_{gaz}} \left( \begin{array}{l} \sum_{\substack{j \geq k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}} \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}\right) \eta' \beta_{j,k} (N_j(z) A_k(z) + N_k(z) A_j(z)) \\ - A_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) - A_i(z) \frac{dU_{gaz}}{dz} \\ - \frac{4A_i(z)}{D_c} (U_{th})_{\text{paroi}} - \frac{1}{\tau_{c,i}} (A_i(z) - N_i(z) a_{s,i}) \\ \text{frittage ou coalescence} \end{array} \right) \quad (4.42)$$

### IV.3.3. Résolution et validation numérique du modèle

L'ensemble des  $M$  équations (4.40), (4.41) et (4.42) constitue un système d'équations différentielles ordinaires du premier ordre. Celui-ci est résolu à l'aide de la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4. Le modèle proposé ci-dessus a été validé numériquement par comparaison avec la solution analytique proposée par Scott (1968) dans le cas d'un noyau d'agglomération constant. Le seul mécanisme d'évolution morphologique pris en compte dans ce cas est l'agglomération et les calculs ont été effectués pour une distribution de particules de type gaussienne. La solution analytique a été modifiée pour pouvoir être utilisée dans le cas d'une progression spatiale et non temporelle. La figure 4.8 montre les résultats obtenus à partir de notre modèle pour différents maillages (en jouant sur le nombre

de sections) et la solution analytique modifiée. Une échelle log-log a été utilisée afin d'accentuer les différences entre la solution numérique et la solution analytique dans l'intervalle de volume où le nombre de particules décroît fortement. On observe une bonne adéquation entre les deux solutions quel que soit le maillage utilisé.



**Figure 4.8 :** Comparaison des résultats obtenus à partir de la solution analytique de Scott (1968) et du modèle d'agglomération dans le cas d'un noyau d'agglomération constant

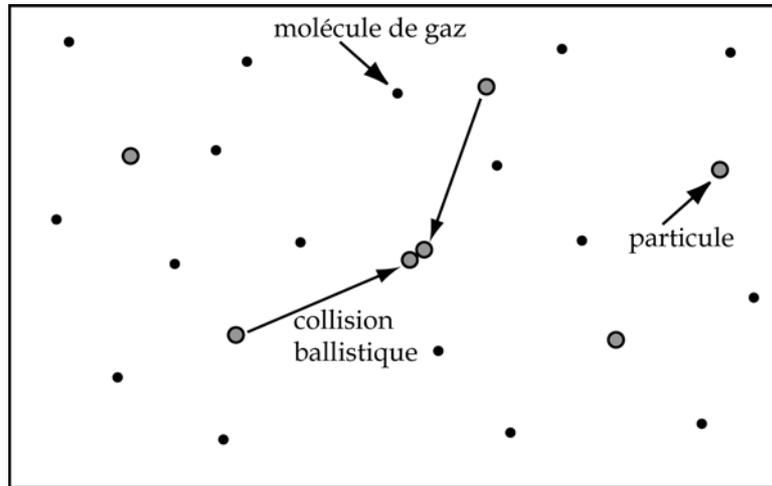
#### IV.4. DETERMINATION DES PARAMETRES DU MODELE

##### IV.4.1. Détermination des paramètres de l'agglomération

###### *Agglomération brownienne*

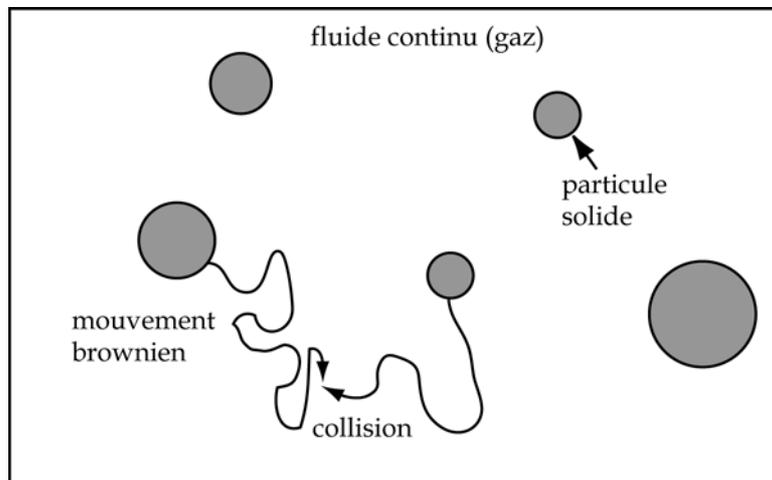
Le calcul du noyau d'agglomération due à l'agitation brownienne diffère selon la taille des particules. Lorsque les particules sont petites devant le libre parcours moyen du

gaz porteur, elles se comportent en suivant la théorie cinétique des gaz, on se trouve alors dans le régime moléculaire libre (figure 4.9).



**Figure 4.9 :** Schéma de principe du régime moléculaire libre

Lorsque les particules ont une taille suffisamment élevée, le gaz peut être considéré comme continu et les particules obéissent aux lois de la diffusion brownienne ; le régime est dit continu (figure 4.10).



**Figure 4.10 :** Schéma de principe du régime continu

D'après les observations réalisées au microscope électronique (cf. chapitre II), les particules qui constituent les poussières couvrent une gamme de tailles très étendue. Leurs collisions peuvent donc être soit celles du régime moléculaire libre, soit celles du régime continu, soit intervenir en régime intermédiaire. Pour tenir compte de cette dispersion, le noyau brownien a été calculé à partir de l'interpolation de Fuchs (1964) qui intègre les relations classiques des noyaux de collision pour les régimes moléculaire libre et continu et une interpolation semi-empirique pour le régime intermédiaire. Le noyau d'agglomération s'écrit alors d'après Seinfeld (1986) :

$$\beta_{i,j}^B = 2\pi(D_{f,i} + D_{f,j})(d_{c,i} + d_{c,j}) \left( \frac{d_{c,i} + d_{c,j}}{d_{c,i} + d_{c,j} + 2g_{i,j}} + \frac{8(D_{f,i} + D_{f,j})}{c_{i,j}(d_{c,i} + d_{c,j})} \right)^{-1} \quad (4.43)$$

$$D_{f,i} = \frac{k_B T}{3\pi\mu_{gaz}d_{c,i}} \left( \frac{5 + 4Kn_i + 6Kn_i^2 + 18Kn_i^3}{5 - Kn_i + (8 + \pi)Kn_i^2} \right) \quad (4.44)$$

$$Kn_i = \frac{2\lambda_{gaz}}{d_{c,i}} \quad (4.45)$$

$$\lambda_{gaz} = v_{gaz} \left( \frac{\pi M_{gaz}}{2k_B T A} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4.46)$$

$$g_{i,j} = (g_i^2 + g_j^2)^{\frac{1}{2}} \quad (4.47)$$

$$g_i = \frac{1}{3d_{c,i}l_i} \left( (d_{c,i} + l_i)^3 - (d_{c,i}^2 + l_i^2)^{\frac{3}{2}} \right) - d_{c,i} \quad (4.48)$$

$$l_i = \frac{8D_{f,i}}{\pi c_i} \quad (4.49)$$

$$c_i = \left( \frac{8k_B T}{\pi m_i} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4.50)$$

$$c_{i,j} = (c_i^2 + c_j^2)^{\frac{1}{2}} \quad (4.51)$$

- avec :
- $D_{f,i}$  coefficient de diffusion de l'agglomérat de volume  $x_i$  ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )
  - $d_{c,i}$  diamètre de collision de l'agglomérat de volume  $x_i$  (m)
  - $c_{i,j}$  « vitesse équivalente » relative aux agglomérats de volume  $x_i$  et  $x_j$  ( $\text{m s}^{-1}$ )
  - $c_i$  vitesse de l'agglomérat de volume  $x_i$  ( $\text{m s}^{-1}$ )
  - $g_{i,j}$  paramètre de « correction de taille équivalente » relative aux agglomérats de volume  $x_i$  et  $x_j$
  - $g_i$  paramètre de correction de taille de l'agglomérat de volume  $x_i$
  - $k_B$  constante de Boltzmann ( $k_B = 1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ )
  - $T$  température (K)
  - $\mu_{gaz}$  viscosité dynamique du gaz ( $\text{kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ )
  - $Kn_i$  nombre de Knudsen de l'agglomérat de diamètre de collision  $d_{c,i}$
  - $\lambda_{gaz}$  libre parcours moyen du gaz (m)
  - $M_{gaz}$  masse molaire du gaz ( $\text{kg mol}^{-1}$ )

$A$	nombre d'Avogadro
$\nu_{gaz}$	viscosité cinématique du gaz ( $m^2 s^{-1}$ )
$l_i$	libre parcours moyen de l'agglomérat de volume $x_i$ (m)
$m_i$	masse de l'agglomérat de volume $x_i$ (kg)

### Agglomération turbulente

L'agglomération turbulente est due à l'existence de tourbillons dans le fluide. Plus le système est turbulent, plus la taille des plus petits tourbillons est faible et leur vitesse importante. Si la taille d'une particule est plus faible que la taille du plus petit tourbillon, alors cette particule est entraînée par le fluide à l'intérieur du tourbillon. Dans le cas contraire, les particules quittent les lignes de courant et sont donc amenées à entrer en collision et à s'agglomérer.

Pour caractériser l'agglomération turbulente, on peut utiliser l'échelle de Kolmogorov qui permet de déterminer la taille du plus petit tourbillon. D'après Kodas et Hampden-Smith (1999), l'échelle de Kolmogorov moyenne pour une conduite cylindrique de diamètre  $D_c$  est donnée par l'expression suivante :

$$\eta_r = \left( \frac{U_{gaz} D_c}{\nu_{gaz}} \right)^{\frac{3}{4}} D_c \quad (4.52)$$

L'agglomération turbulente devient significative lorsque la taille des particules est supérieure à l'échelle de Kolmogorov. La forme générale du noyau de collision turbulente s'écrit :

$$\beta_{i,j}^T = K_T (d_{c,i} + d_{c,j})^3 \quad (4.53)$$

$$K_T = \alpha_T \left( \frac{\varepsilon}{\nu_{gaz}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4.54)$$

Le coefficient  $\alpha_T$  a été défini par Levich (1962), par analogie avec la théorie du mouvement brownien :

$$\beta_{i,j}^T = 1,72 \left( \frac{\varepsilon}{\nu_{gaz}} \right)^{\frac{1}{2}} (d_{c,i} + d_{c,j})^3 \quad (4.55)$$

avec :  $\varepsilon$  vitesse de dissipation de l'énergie turbulente par unité de masse ( $m^2 s^{-3}$ )

La vitesse de dissipation de l'énergie turbulente est estimée à partir de l'expression employée par Xiong et Pratsinis (1991) et par Friedlander (1977) pour la région centrale d'un écoulement dans une conduite cylindrique :

$$\varepsilon = \frac{4}{D_c} \left( \frac{f}{2} \right)^{\frac{3}{2}} U_{gaz}^3 \quad (4.56)$$

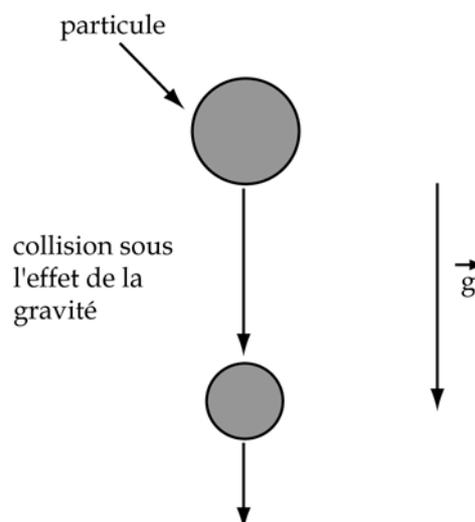
$$f = \frac{0,0791}{Re^{\frac{1}{4}}} \quad (4.57)$$

$$Re = \frac{D_c U_{gaz}}{\nu_{gaz}} \quad (4.58)$$

avec :  $f$       coefficient de friction aux parois  
 $Re$       nombre de Reynolds du gaz

#### *Agglomération par sédimentation différentielle*

La sédimentation correspond à la chute des particules sous l'effet de la gravité. La vitesse de chute des particules dépend de leurs caractéristiques physiques (taille, masse volumique etc...). Si les particules n'ont pas la même vitesse de chute, elles peuvent alors entrer en collision et s'agglomérer (voir figure 4.11).



**Figure 4.11** : Schéma de principe de l'agglomération différentielle

Dans ce cas, le noyau d'agglomération correspond au produit de la surface de collision des deux particules avec la vitesse relative de collision, que l'on suppose égale à la différence des vitesses terminales de chute des particules :

$$\beta_{i,j}^{\text{sed.}} = \frac{\pi}{4} (d_i + d_j)^2 |U_{s,i} - U_{s,j}| \quad (4.59)$$

avec :  $U_{s,i}$  vitesse terminale de chute d'une particule de volume  $x_i$  ( $\text{m s}^{-1}$ )  
 $d_i$  diamètre de la particule de volume  $x_i$  (m)

Comme nous l'avons déjà mentionné au chapitre précédent, l'hypothèse de Stokes permet de calculer la vitesse terminale de chute d'une sphère :

$$U_{s,i} = \frac{(\rho_p - \rho_{\text{gaz}}) g d_i^2}{18 \mu_{\text{gaz}}} \quad (4.60)$$

avec :  $\rho_p$  masse volumique de la particule ( $\text{kg m}^{-3}$ )  
 $\rho_{\text{gaz}}$  masse volumique du gaz ( $\text{kg m}^{-3}$ )

On a alors :

$$\beta_{i,j}^{\text{sed.}} = \frac{g \pi}{72 \mu_{\text{gaz}}} (\rho_p - \rho_{\text{gaz}}) (d_i + d_j)^3 |d_i - d_j| \quad (4.61)$$

Cette expression est valable uniquement pour des particules de forme sphérique. Elle ne prend pas en compte la nature fractale des agglomérats qui entraîne une modification des coefficients de traînée et donc de la vitesse terminale de chute. La littérature propose plusieurs expressions du noyau d'agglomération valables pour des agglomérats fractals (voir la revue bibliographique de [Hébrard (2004)]), mais aucune n'est réellement satisfaisante du fait de la difficulté de prendre en compte la perméabilité et la forme irrégulière des agglomérats dans le calcul de la vitesse de sédimentation. Nous utiliserons l'expression proposée par Hébrard (2004) :

$$\beta_{i,j}^{\text{sed.}} = \frac{\pi (d_{c,i} + d_{c,j})^2}{4} \left( \frac{4 \rho_p - \rho_{\text{gaz}}}{3a \rho_{\text{gaz}} \mu_{\text{gaz}}^b} \right)^{\frac{1}{2-b}} \left| d_{\text{pd},i}^{\frac{3-D_f}{2-b}} d_{c,i}^{\frac{D_f-2+b}{2-b}} - d_{\text{pd},j}^{\frac{3-D_f}{2-b}} d_{c,j}^{\frac{D_f-2+b}{2-b}} \right| \quad (4.62)$$

$$a = 24 \text{ et } b = 1 \text{ si } Re_p \ll 1$$

$$a = 29,03 \text{ et } b = 0,871 \text{ si } 0,1 < Re_p < 10$$

avec :  $Re_p$  le nombre de Reynolds de la particule  
 $d_{\text{pd},i}$  diamètre des particules discrètes constituant l'agglomérat de diamètre de collision  $d_{c,i}$  (m)

### *Noyau d'agglomération résultant*

Généralement la contribution des différents phénomènes de collision est considérée comme additive [Huber (2000)]. Le noyau de collision résultant correspond à la somme des noyaux brownien, turbulent et d'agglomération différentielle pondérés par leur efficacité de capture :

$$\beta_{i,j} = \alpha_B \beta_{i,j}^B + \alpha_T \beta_{i,j}^T + \alpha_S \beta_{i,j}^{\text{sed.}} \quad (4.63)$$

avec :  $\alpha_i$  l'efficacité de capture (i = B, T ou S).

L'efficacité de capture représente la probabilité de capture et donc d'agglomération lors de la collision de deux particules. Ce paramètre dépend de la nature et de la force des interactions exercées entre les particules. Une valeur de 1 correspond à deux particules entrant en collision et restant en contact en raison de l'existence de forces d'attraction puissantes. Au contraire, une valeur proche de 0 est caractéristique d'interaction faible ; la probabilité que les particules qui se rencontrent ne restent pas en contact est alors très élevée.

La plupart des auteurs considèrent que l'efficacité de capture de l'agglomération brownienne et turbulente est proche de 1. C'est donc cette valeur que nous avons également retenue. En revanche, les calculs menés par Davis (1984) montrent que l'efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle est inférieure à 0,1 pour des particules inférieures au micromètre, lorsqu'on prend en compte les forces de Van der Waals. Elle peut être beaucoup plus faible si des forces de répulsion existent. L'efficacité de capture est un paramètre difficile à déterminer et l'on ne dispose pas de valeurs précises tenant compte notamment de la taille des particules. Dans la suite de nos calculs, nous utiliserons 0,1 comme valeur de référence de l'efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle et nous testerons des valeurs inférieures afin d'évaluer l'influence de ce paramètre sur l'agglomération.

#### **IV.4.2. Détermination des paramètres du frittage**

##### *Temps caractéristique de coalescence*

Le temps caractéristique de coalescence par déformation visqueuse a été déterminé par Frenkel (1945) à partir de l'équation de Laplace :

$$\tau_{\text{coal},i} = \frac{\mu_p}{\sigma_p} d_{\text{pd},i} \quad (4.64)$$

avec :  $\sigma_p$  tension de surface de la particule ( $\text{N m}^{-1}$ )  
 $\mu_p$  viscosité de la particule ( $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ ).

### *Temps caractéristique de frittage*

Le frittage entre deux particules fait intervenir plusieurs mécanismes agissant suivant des cinétiques différentes : diffusion aux joints de grains, diffusion lacunaire, diffusion en surface, volatilisation/condensation. C'est le mécanisme le plus rapide qui impose le temps caractéristique de frittage. Dans notre cas, nous considérons uniquement la diffusion en volume pour laquelle nous disposons de l'expression théorique proposée par Friedlander et Wu (1994) :

$$\tau_{\text{frit},i} = \frac{\rho_p RT}{64 D_v \sigma_p M_{\text{mol},p}} d_{\text{pd},i}^3 \quad (4.65)$$

avec :  $D_v$  coefficient de diffusion en volume ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )  
 $M_{\text{mol},p}$  masse molaire de la particule ( $\text{kg mol}^{-1}$ ).

### *Temps caractéristique résultant*

Le frittage et la coalescence sont deux phénomènes similaires qui entraînent une diminution de la surface des agglomérats mais selon des mécanismes différents : diffusion ou déformation visqueuse. Des deux phénomènes, c'est le plus rapide qui impose le temps caractéristique de réduction de surface. Pour en rendre compte, nous avons utilisé un temps caractéristique correspondant à la moyenne harmonique des temps de frittage et de coalescence :

$$\tau_{c,i} = \frac{\tau_{\text{coal},i} \tau_{\text{frit},i}}{\tau_{\text{frit},i} + \tau_{\text{coal},i}} \quad (4.66)$$

### **IV.4.3. Détermination des paramètres de la thermophorèse**

La vitesse de thermophorèse au niveau de la paroi s'écrit sous la forme suivante :

$$(U_{\text{th}})_{\text{paroi}} = -K_{\text{th}} v_{\text{gaz}} \frac{\nabla T}{T_{\text{gaz}}} \quad (4.67)$$

avec :  $T_{\text{gaz}}$  température moyenne du gaz dans la conduite (K)  
 $\nabla T$  gradient thermique au niveau de la paroi ( $\text{K m}^{-1}$ )  
 $K_{\text{th}}$  coefficient de thermophorèse

Comme le noyau d'agglomération brownienne, le coefficient de thermophorèse varie en fonction du nombre de Knudsen. Lorsque  $Kn \gg 1$ , on se trouve dans le domaine

moléculaire et la particule peut être considérée comme une molécule. Le mouvement de l'aérosol est alors décrit en utilisant les lois de la théorie cinétique des gaz. Pour  $Kn \rightarrow 0$  (jusqu'à  $Kn < 0,2$ ), le milieu qui entoure la particule peut être considéré comme continu et on utilisera alors les lois de la mécanique des fluides. Compte tenu de la grande dispersion des tailles de particules contenues dans les poussières de four électrique, le coefficient de thermophorèse a été calculé à partir de l'expression proposée par Talbot et al. (1980), valable pour toutes les valeurs de  $Kn$  :

$$K_{th} = 2,294 \frac{\left[ \left( \frac{k_{gaz}}{k_p} + 2,2Kn \right) Cu \right]}{(1 + 3,438Kn) \left( 1 + 2 \frac{k_{gaz}}{k_p} + 4,4Kn \right)} \quad (4.68)$$

$$Cu = 1 + Kn \left( 1,257 + 0,4 \exp \left( -\frac{1,1}{Kn} \right) \right) \quad (4.69)$$

avec :  $k_{gaz}$  conductivité thermique du gaz ( $W m^{-1} K^{-1}$ )  
 $k_p$  conductivité thermique de la particule ( $W m^{-1} K^{-1}$ )  
 $Cu$  coefficient de Cunningham

#### IV.4.4. Détermination des données physiques

L'utilisation du modèle développé précédemment nécessite la connaissance d'un certain nombre de paramètres physiques caractéristiques des particules et du gaz porteur (viscosité, tension de surface, conductivité thermique...). Ceux-ci dépendent à la fois de la composition chimique et de la température de la phase considérée. Le gaz porteur se compose de monoxyde de carbone CO, de dioxyde de carbone CO<sub>2</sub>, d'azote N<sub>2</sub>, d'oxygène O<sub>2</sub> et éventuellement d'hydrogène H<sub>2</sub>, mais la proportion de chacun des composants peut varier tout au long du circuit de captage. La chaleur massique moyenne de la phase gazeuse est égale à la somme des chaleurs massiques de chacun de ses constituants, pondérées par leur titres massiques. La viscosité et la conductivité thermique de la phase gazeuse sont calculées d'après les formules de Wilke [Bird et al. (1962)].

Les particules de poussières sont constituées d'oxydes issus du laitier ou du métal. Leur composition varie selon le mécanisme responsable de leur émission. Ne pouvant tenir compte de ces hétérogénéités dans notre modèle, nous avons choisi une composition moyenne caractéristique d'un laitier de four électrique (voir tableau 4.3). C'est en effet le laitier qui constitue le plus souvent la phase liante des poussières (cf. § II.1). Il s'agit d'une approximation qui a en fait peu de conséquences sur les résultats du modèle. En effet, celui-ci est peu sensible aux variations de composition des particules, même lorsque celles-ci sont importantes. A partir de cette composition, la tension de surface des particules a été calculée à partir de la méthode de Mills et Keene (1987) qui ont proposé de calculer la tension de surface d'un laitier par addition des contributions de chacun des constituants. La viscosité a été calculée à l'aide de la méthode d'Huber (2000) inspirée du modèle d'Urbain (1987). La

chaleur massique est calculée de la même façon que pour la phase gazeuse. Enfin, la valeur de la conductivité thermique provient de mesures expérimentales effectuées à l'IRSID [Huber (2003)].

**Tableau 4.3 :** Composition massique moyenne des particules de poussières, utilisée dans le modèle d'agglomération

FeO	CaO	SiO <sub>2</sub>	MgO	MnO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	TiO <sub>2</sub>
16,14	39,01	24,01	10,70	4,36	3,18	0,408	1,45

Quelques valeurs des différents paramètres utilisés dans le modèle sont présentées en Annexe D.

## IV.5. EXPLOITATION DU MODELE – INFLUENCE DES DIFFERENTS PARAMETRES

### IV.5.1. Introduction

Le modèle développé précédemment a été testé dans différentes configurations afin de déterminer l'influence des différents mécanismes d'évolution morphologique. Nous nous sommes tout d'abord intéressés à quelques cas académiques qui nous ont permis d'étudier l'influence de la température, de la turbulence et de la concentration en poussière dans une configuration simple. Le modèle a ensuite été appliqué au cas du four électrique à arc, puis au cas du convertisseur.

Les deux objectifs qui ont guidés notre démarche étaient, d'une part, d'identifier et de hiérarchiser les principaux mécanismes qui gouvernent l'évolution morphologique des poussières et, d'autre part et dans la mesure du possible, de prédire cette évolution en fonction des conditions opératoires.

### IV.5.2. Etude de cas académiques

Afin d'évaluer le rôle de la température, de la concentration en poussière et de la distribution de taille des particules sur leur évolution morphologique, le modèle a tout d'abord été testé dans une configuration relativement simple : conduite cylindrique sans variation de section, de température, de vitesse de gaz et sans dilution. Nous avons choisi une composition de gaz de 70% N<sub>2</sub>, 10% O<sub>2</sub>, 10% CO<sub>2</sub> et 10% CO, globalement représentative du gaz du circuit de captage. L'influence de la température a été étudiée en faisant varier celle-ci de 1800 à 500 K, qui sont les valeurs limites rencontrées au four électrique. Dans ce réacteur, Huber (2000) a évalué la concentration massique normale en poussière à 0,166 kg Nm<sup>-3</sup>. Pour faciliter la comparaison des résultats, la valeur de base de la concentration initiale utilisée pour nos calculs a été fixée à 0,166 kg m<sup>-3</sup> ; cette approximation

surestime légèrement la concentration particulaire réelle mais permet de conserver des distributions initiales semblables quelles que soient les conditions de température. Cette valeur de base correspond à une dispersion homogène des particules dans la phase gazeuse. Or il peut exister localement de fortes concentrations de particules qui peuvent entraîner une modification de l'évolution morphologique des particules. Pour évaluer l'influence de ce paramètre, nous avons également utilisé des valeurs de concentration initiale dix fois et cent fois plus élevées que la valeur de base. Enfin, dans notre modèle, la turbulence est caractérisée par  $\varepsilon$ , la vitesse de dissipation de l'énergie turbulente. Pour faire varier ce paramètre, nous avons joué sur la valeur de la section de la conduite et du débit de gaz, ce qui permet de donner simplement un caractère plus ou moins turbulent à l'écoulement gazeux.

Les calculs ont été menés pour un temps de séjour dans la conduite de 5 secondes, ce qui correspond aux ordres de grandeur des temps de séjour des particules dans les différentes parties du circuit de captage du four électrique. Chacun des mécanismes d'évolution morphologique (agglomération brownienne, frittage, agglomération par sédimentation différentielle, agglomération turbulente) a été testé sans prise en compte, dans un premier temps, du dépôt par thermophorèse. Par ailleurs, les variables morphologiques ont été initialisées à partir d'un certain nombre d'hypothèses. En effet, au four électrique comme au convertisseur, la distribution granulométrique initiale des particules contenues dans les poussières n'est pas connue de manière précise. Comme nous l'avons vu au chapitre II, leur taille peut varier de quelques dizaines de nm à plus de 100  $\mu\text{m}$  selon le mécanisme responsable de leur émission (volatilisation de la charge, éclatement des bulles de CO, projections à l'impact de l'arc et du jet d'oxygène, réenvol direct). Faute de données fiables, nous avons construit des distributions de taille hypothétiques en nous basant sur les résultats de l'étude expérimentale présentée au chapitre III. Nous savons par exemple qu'il existe deux grandes catégories de particules, l'une constituée de fines provenant de la vaporisation du bain, l'autre de particules sphéroïdales de taille plus élevée, qui correspondent à des gouttelettes émises lors de l'éclatement des bulles de CO. Les mesures de surface spécifiques réalisées par la méthode BET montrent que les particules issues de la vaporisation du bain en conditions expérimentales de laboratoire (voir § III.2) ont une taille moyenne d'environ 30 nm. La taille des particules provenant de l'éclatement varie en fonction de la taille des bulles. Si l'on considère une taille moyenne de bulle comprise entre 8 et 9 mm, la taille des particules varie entre 500 nm et 20  $\mu\text{m}$  avec une taille moyenne d'environ 4  $\mu\text{m}$ . En tenant compte de ces données, nous avons testé trois distributions de type log-normal, la dispersion étant fixée à 2. La première distribution, que nous appellerons D1, est centrée sur 30 nm ; elle correspond à une population de fines particules issues de la vaporisation uniquement. La seconde, que nous appellerons D2, est centrée sur 4  $\mu\text{m}$ , soit une population de particules provenant essentiellement de l'éclatement des bulles. La troisième distribution, que nous appellerons D3, est une combinaison des distributions D1 et D2 destinée à représenter une population de particules provenant à la fois de la vaporisation et de l'éclatement des bulles. Il s'agit d'une distribution bimodale (voir figure 4.12) dont l'un des modes est centré sur 30 nm et l'autre sur 4  $\mu\text{m}$ . 30% (en masse) de la concentration initiale a été attribuée au premier mode et 70% au second, ce qui correspond aux répartitions mesurées par Birat et al. (1998) entre les différents mécanismes d'émission de poussières au four électrique à arc (voir § II.2.1).

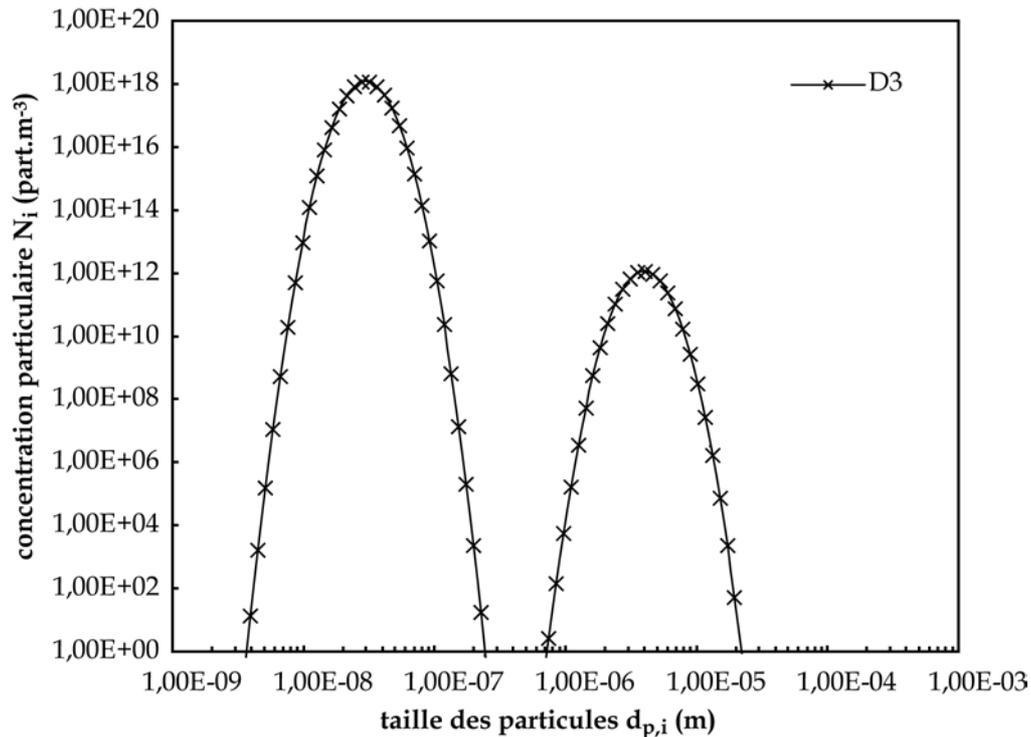


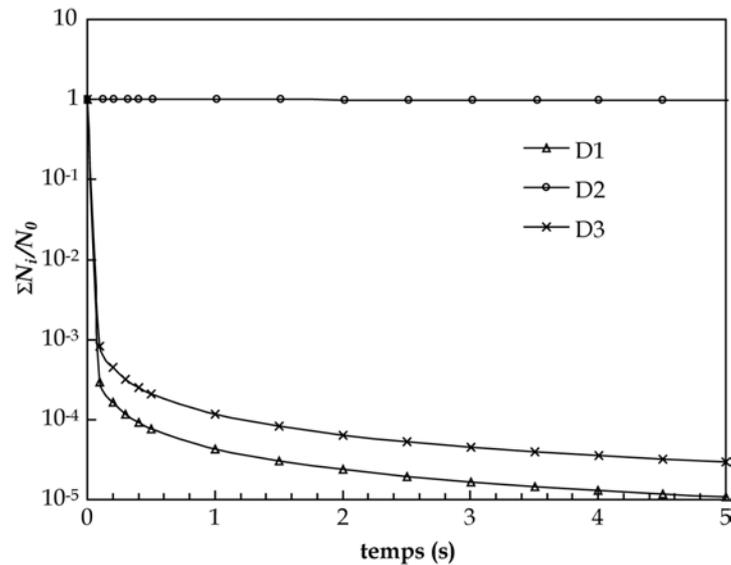
Figure 4.12 : Représentation de la distribution initiale D3

### Etude de l'agglomération brownienne

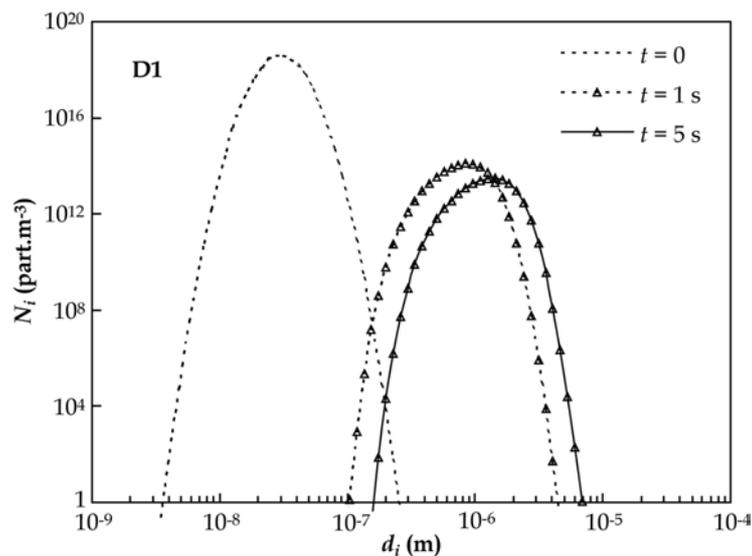
Pour étudier l'agglomération brownienne indépendamment des autres mécanismes d'évolution morphologique, le noyau de sédimentation et le temps caractéristique de frittage ont été fixés à 0. Il n'y a donc aucune agglomération par sédimentation différentielle et le frittage des particules est quasi-instantané ce qui revient à considérer les agglomérats comme des sphères compactes. Les calculs ont été effectués en imposant une vitesse de gaz faible afin de rendre négligeable l'agglomération turbulente (diamètre de la conduite : 2m, débit de gaz :  $0,01 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , soit une vitesse de gaz de  $3,18 \cdot 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$  ce qui correspond à une vitesse de dissipation de l'énergie turbulente variant entre  $7,2 \cdot 10^{-11}$  et  $1,6 \cdot 10^{-10}$  en fonction de la température).

La figure 4.13 présente l'évolution du nombre relatif total d'agglomérats pour les distributions D1, D2 et D3, la température étant fixée à 1800 K et la concentration massique initiale à  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ . Le nombre relatif total d'agglomérats ( $\sum N_i/N_0$ ) est le rapport du nombre total d'agglomérats à un instant  $t$ , sur le nombre initial d'agglomérats  $N_0$ . L'agglomération brownienne concerne essentiellement les particules dont la taille est inférieure à  $1 \mu\text{m}$ . Ainsi, le nombre d'agglomérats de la distribution D2 n'évolue quasiment pas au cours des 5 secondes d'agglomération, alors que pour les populations D1 et D3, l'agglomération est extrêmement rapide, le nombre total d'agglomérats étant divisé par mille en moins d'une seconde. Il évolue ensuite plus lentement en raison de la diminution de la concentration numérale de particules. Les figures 4.14 et 4.15 montrent l'allure des

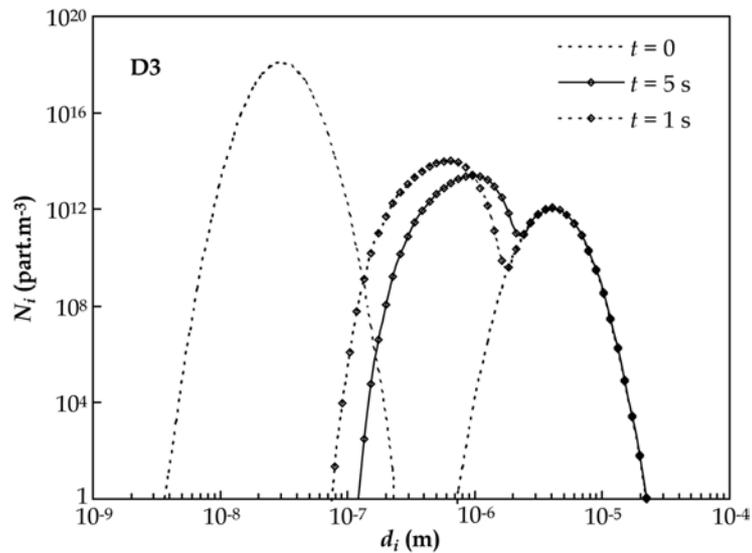
distributions D1 et D3 pour  $t = 1$  s et  $t = 5$  s. Dans les deux cas, la dispersion moyenne évolue peu. En revanche, la taille moyenne des agglomérats de la distribution D1 augmente nettement, passant de 30 nm à  $t = 0$ , à 1,34  $\mu\text{m}$  après 5 secondes d'agglomération. Pour la distribution D3 qui est de type bimodal, il est difficile de définir une taille moyenne d'agglomérats. Néanmoins, on constate que les fines particules s'agglomèrent entre elles, et peu sur les grosses particules qui ne sont pas affectées par l'agglomération brownienne. La presque totalité des agglomérats des deux distributions ont une taille supérieure à 100 nm, alors qu'initialement la majeure partie des particules avaient une taille inférieure à cette valeur.



**Figure 4.13 :** Evolution du nombre relatif d'agglomérats au cours du temps par agglomération brownienne pour les distributions D1, D2, D3 ( $T = 1800$  K, concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ )

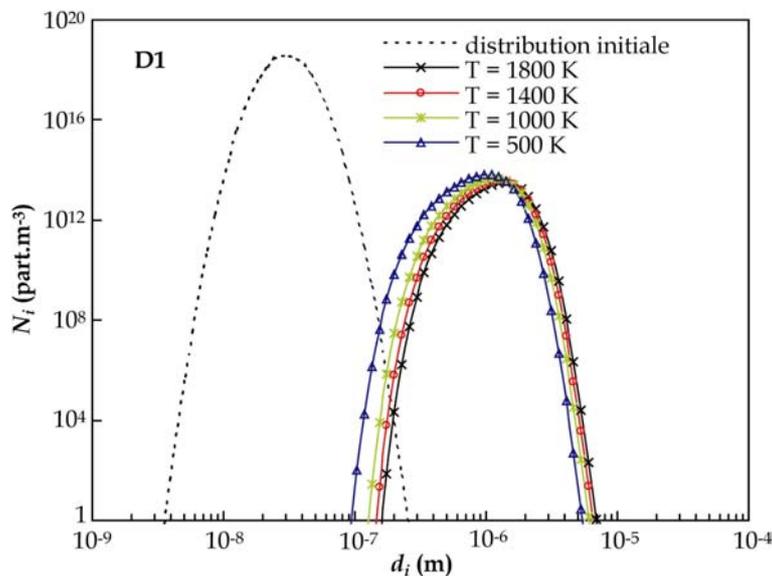


**Figure 4.14 :** Evolution de la distribution D1 par agglomération brownienne ( $T = 1800$  K, concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ )



**Figure 4.15 :** Evolution de la distribution D3 par agglomération brownienne ( $T = 1800 \text{ K}$ , concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ )

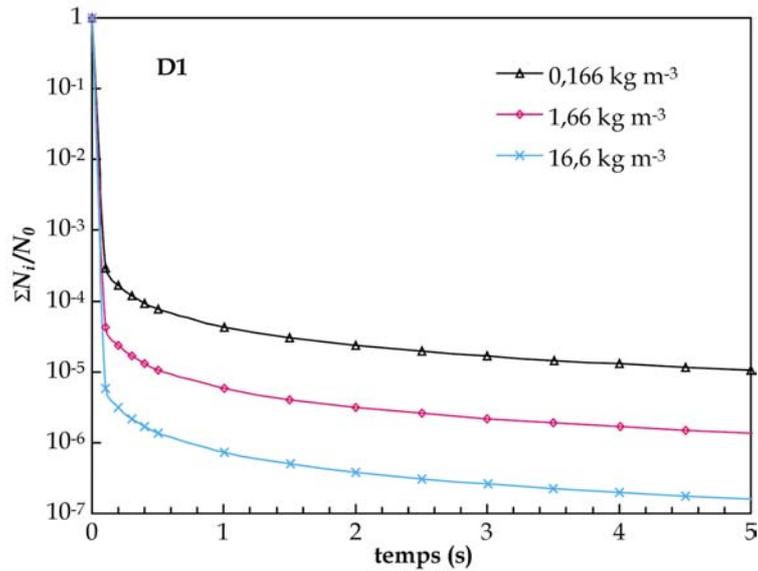
La figure 4.16 montre l'évolution de la distribution D1 pour  $T = 1800 \text{ K}$ ,  $1400 \text{ K}$ ,  $1000 \text{ K}$ ,  $500 \text{ K}$ . L'augmentation de la température a tendance à favoriser l'agglomération des particules par agitation brownienne, le noyau d'agglomération étant proportionnel à la température ; cependant, son influence reste limitée.



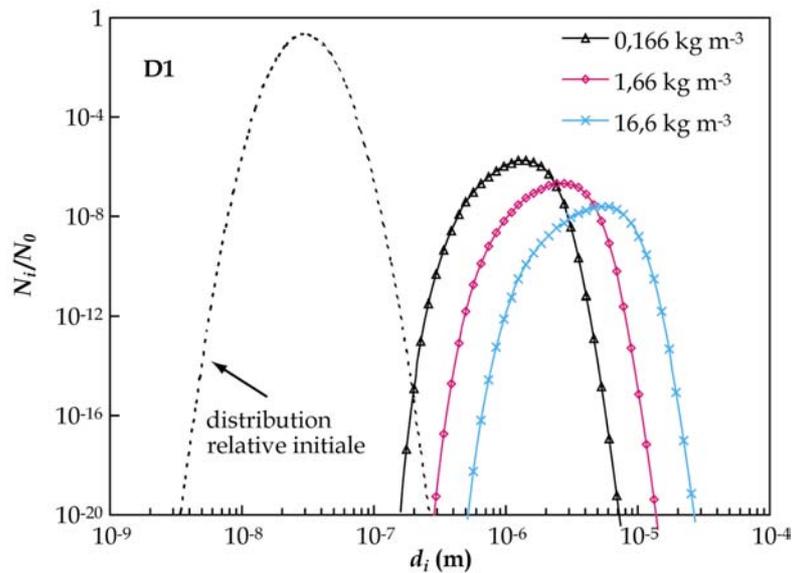
**Figure 4.16 :** Influence de la température sur l'agglomération brownienne - Evolution du nombre relatif d'agglomérats pour  $T = 1800 \text{ K}$ ,  $1400 \text{ K}$ ,  $1000 \text{ K}$ ,  $500 \text{ K}$  (distribution initiale : D1, concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ )

Les figure 4.17 (a) et 4.18 (a) montrent l'évolution du nombre relatif total d'agglomérats des populations D1 et D2 pour différentes valeurs de la concentration initiale, la température étant fixée à  $1800 \text{ K}$ . Les figure 4.17 (b) et 4.18 (b) représentent les

distributions relatives de taille de particules des populations D1 et D2 après 5 secondes d'agglomération, pour ces valeurs de concentration initiale. Contrairement à la température, ce paramètre joue un rôle sensible dans l'agglomération des particules. Plus la concentration initiale est forte, plus l'agglomération des particules est importante. Cet effet est particulièrement marqué pour la distribution D1 puisque le diamètre moyen des agglomérats après cinq secondes d'agglomération passe de  $1,34 \mu\text{m}$  pour une concentration de  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$  à  $5,27 \mu\text{m}$  pour une concentration de  $16,6 \text{ kg m}^{-3}$ . En revanche, l'augmentation de la concentration initiale modifie peu la dispersion moyenne.

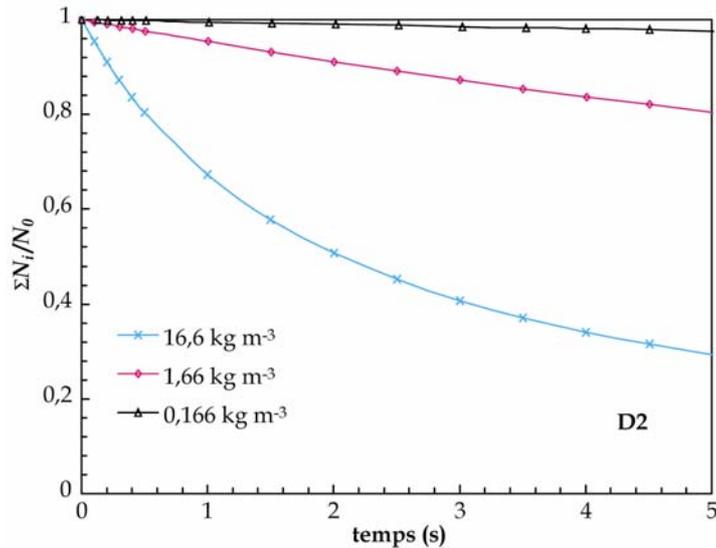


(a) Evolution temporelle du nombre relatif total d'agglomérat ( $T = 1800 \text{ K}$ )

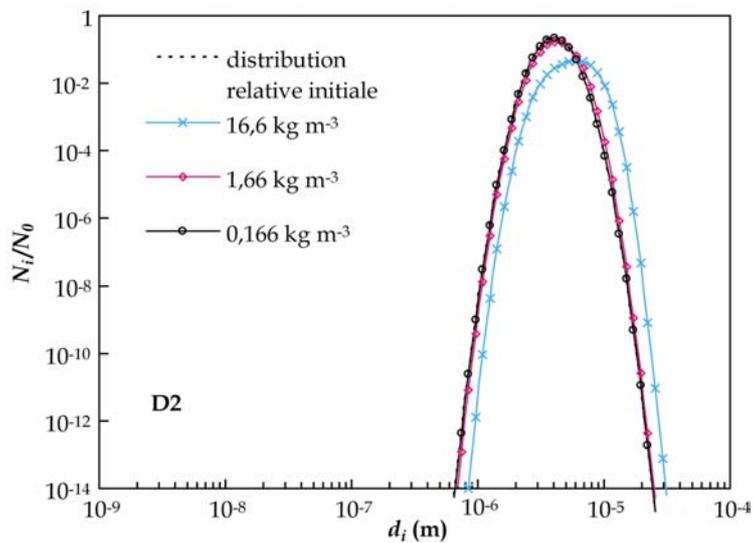


(b) Evolution des distributions relatives après 5 secondes d'agglomération

**Figure 4.17 :** Influence de la concentration initiale de particules sur l'évolution de la distribution D1 par agglomération brownienne ( $T = 1800 \text{ K}$ )



(b) Evolution temporelle du nombre relatif total d'agglomérat ( $T = 1800 \text{ K}$ )



(b) Evolution des distributions relatives après 5 secondes d'agglomération

**Figure 4.18** : Influence de la concentration initiale de particules sur l'évolution de la distribution D2 par agglomération brownienne ( $T = 1800 \text{ K}$ )

### Frittage et coalescence

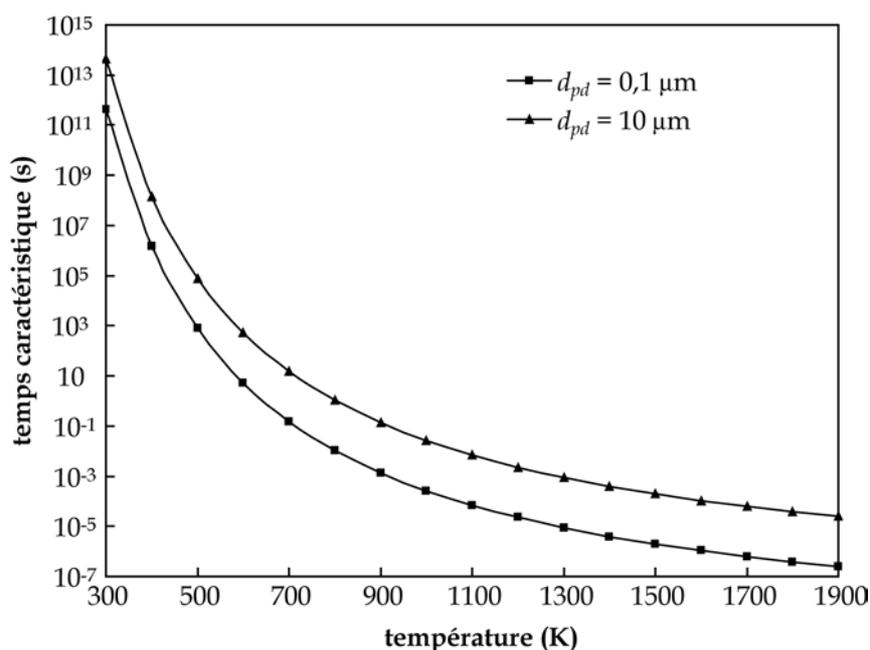
Pour étudier le frittage et la coalescence des agglomérats, nous nous sommes placés dans les mêmes conditions que pour l'étude de l'agglomération mais sans supposer a priori de coalescence instantanée. Le tableau 4.4 rassemble les caractéristiques moyennes des agglomérats de la population D1, après 5 secondes d'agglomération brownienne avec frittage et coalescence non instantanés, tels que calculés par notre modèle complet, ou bien avec coalescence instantanée (cas qui correspond à celui étudié dans le paragraphe précédent).

**Tableau 4.4 :** Caractéristiques moyennes des agglomérats de la population D1 après 5 s d'agglomération brownienne, avec frittage et coalescence non instantanée (« modèle complet »), ou bien avec coalescence instantanée (concentration initiale : 0,166 kg m<sup>-3</sup>)

D1	T = 500 K		T = 1000 K		T = 1400 K	
	<i>coalescence instantanée</i>	<i>modèle complet</i>	<i>coalescence instantanée</i>	<i>modèle complet</i>	<i>coalescence instantanée</i>	<i>modèle complet</i>
$d_{p,moyen}$	0,986 μm	0,986 μm	1,15 μm	1,15 μm	1,25 μm	1,25 μm
$d_{c,moyen}$	0,986 μm	8,5 μm	1,15 μm	1,15 μm	1,25 μm	1,25 μm
$n_{pd,moyen}$	1	16160	1	1	1	1
$d_{pd,moyen}$	0,986 μm	0,039 μm	1,15 μm	1,15 μm	1,25 μm	1,25 μm
$\Sigma N_i/N_0$	2,49 10 <sup>-5</sup>	2,49 10 <sup>-5</sup>	1,65 10 <sup>-5</sup>	1,65 10 <sup>-5</sup>	1,29 10 <sup>-5</sup>	1,29 10 <sup>-5</sup>

avec :  $d_{p,moyen}$  diamètre moyen équivalent en volume des agglomérats  
 $d_{c,moyen}$  diamètre moyen de collision  
 $n_{pd,moyen}$  nombre moyen de particules discrètes constituant un agglomérat  
 $d_{pd,moyen}$  diamètre moyen des particules discrètes

Pour  $T \geq 1000$  K, le frittage des particules est total, alors qu'à 500 K, les particules ne coalescent plus ce qui se traduit par la formation d'agglomérats composés en moyenne de 16160 particules discrètes dont le diamètre est légèrement supérieur à la taille moyenne initiale des particules (légère augmentation par frittage). Le diamètre de collision de ces agglomérats est alors légèrement supérieur à celui obtenu à des températures plus élevées. Ceci s'explique par l'augmentation de la viscosité de l'agglomérat lorsque la température diminue, la coalescence et le frittage étant d'autant plus lents que la viscosité est élevée. La figure 4.19 montre l'évolution du temps caractéristique de frittage de particules de diamètre 10 μm ou 0,1 μm en fonction de la température. Lorsque la température est supérieure à 1100 K, ce qui correspond à la température de transition vitreuse du laitier, la coalescence est le mécanisme prépondérant. Le temps caractéristique de réduction de surface est alors extrêmement faible même pour les grosses particules, ce qui permet aux agglomérats de coalescer complètement. Pour des températures inférieures à 1100 K, la réduction de surface est provoquée par le frittage dont le temps caractéristique est plus faible que le temps caractéristique de coalescence. Ainsi lorsque la température est inférieure à 900 K, le temps caractéristique de frittage de particules dont la taille dépasse 100 nm est supérieur à 10 secondes et dépasse 10<sup>4</sup> secondes lorsque la température atteint 500 K. Le frittage est alors un phénomène lent par rapport au temps de séjour des particules dans le circuit de captage des fumées. En s'agglomérant, celles-ci forment alors de gros amas constitués de particules discrètes.

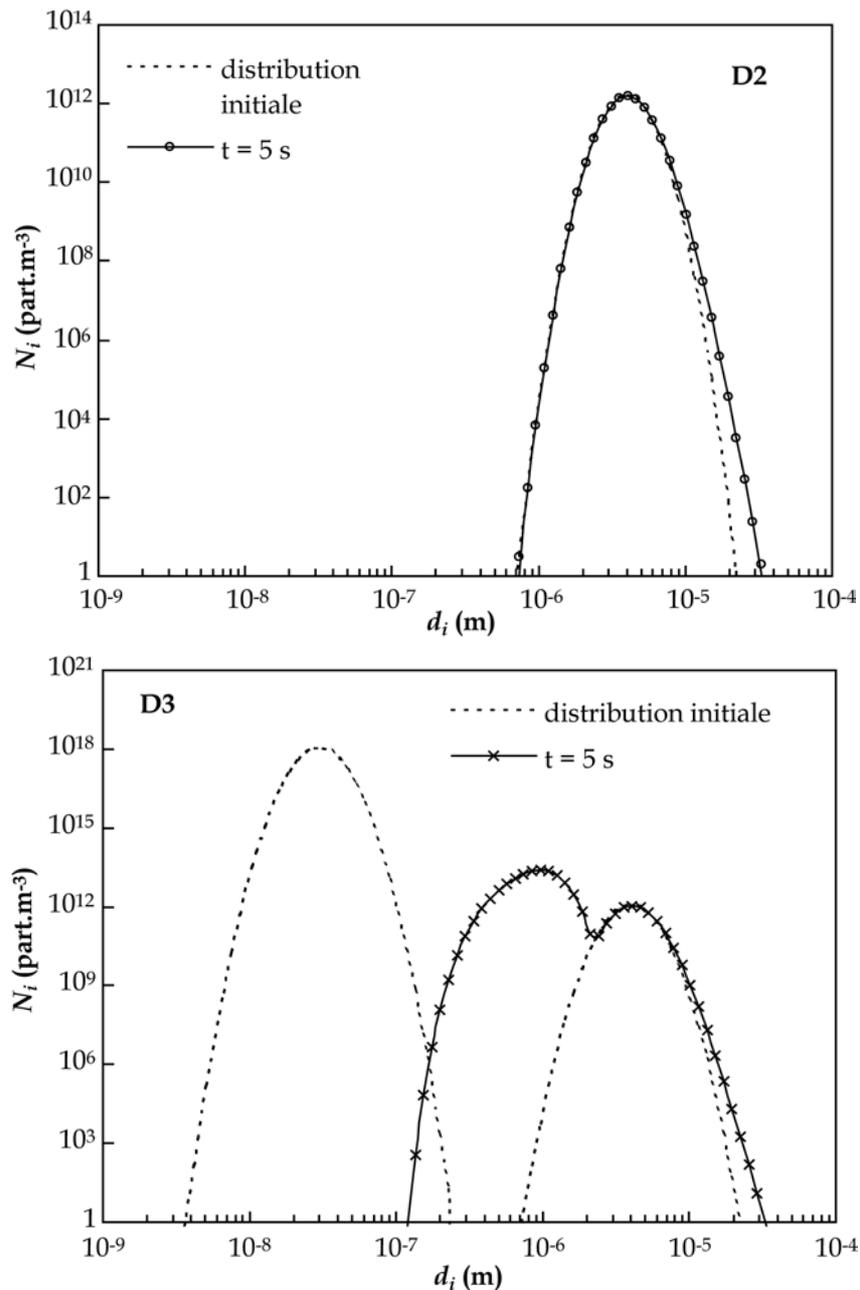


**Figure 4.19 :** Evolution du temps caractéristique de frittage et de coalescence pour deux tailles de particules en fonction de la température ( $d_{pd}$  : diamètre des particules)

### *Agglomération par sédimentation différentielle*

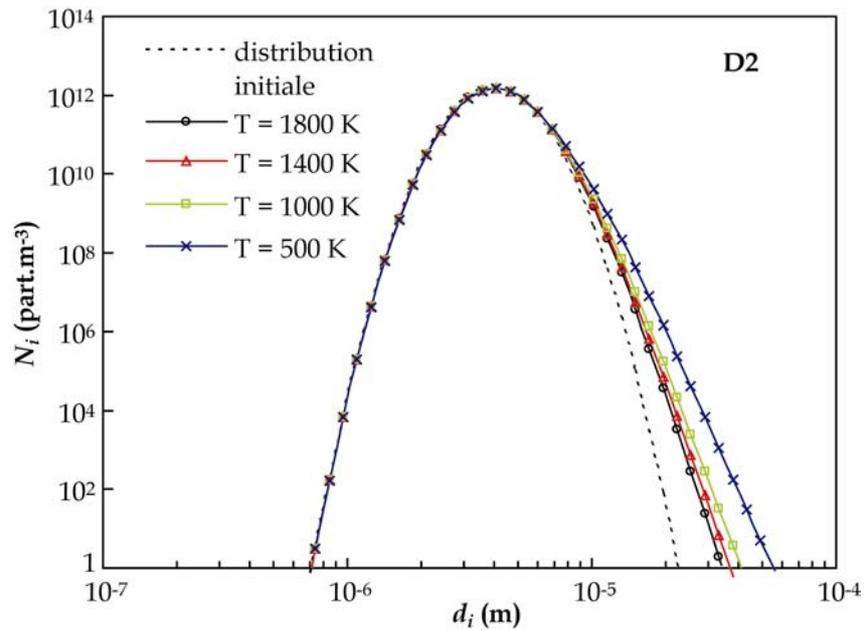
Pour étudier l'agglomération différentielle, nous nous sommes placés en conditions de faible turbulence (diamètre de conduite : 2 m, débit :  $0,01 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ ). Sachant qu'il s'agit d'un phénomène de base, dont il est difficile de ne pas tenir compte, l'agglomération brownienne a été intégrée aux calculs, tout comme le frittage et la coalescence des particules. Par ailleurs, la valeur de référence de l'efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle,  $\alpha_s$ , a été fixée à 0,1.

La figure 4.20 montre l'allure des distributions D2 et D3 après 5 s d'agglomération, la température étant fixée à 1800 K et la concentration initiale à  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ . Dans le cas de la population D3, les fines particules ne sont pas affectées par la sédimentation différentielle ; leur évolution morphologique est similaire à celle obtenue par agglomération brownienne uniquement (cf. figure 4.15). En revanche, on observe, pour les deux populations, une augmentation du nombre de grosses particules due à l'agglomération par sédimentation différentielle, qui n'apparaît pas lorsque l'agglomération brownienne est le seul mécanisme d'évolution. L'influence de ce phénomène, qui entraîne un léger élargissement des distributions de taille, reste néanmoins limitée dans les conditions utilisées pour ce calcul.



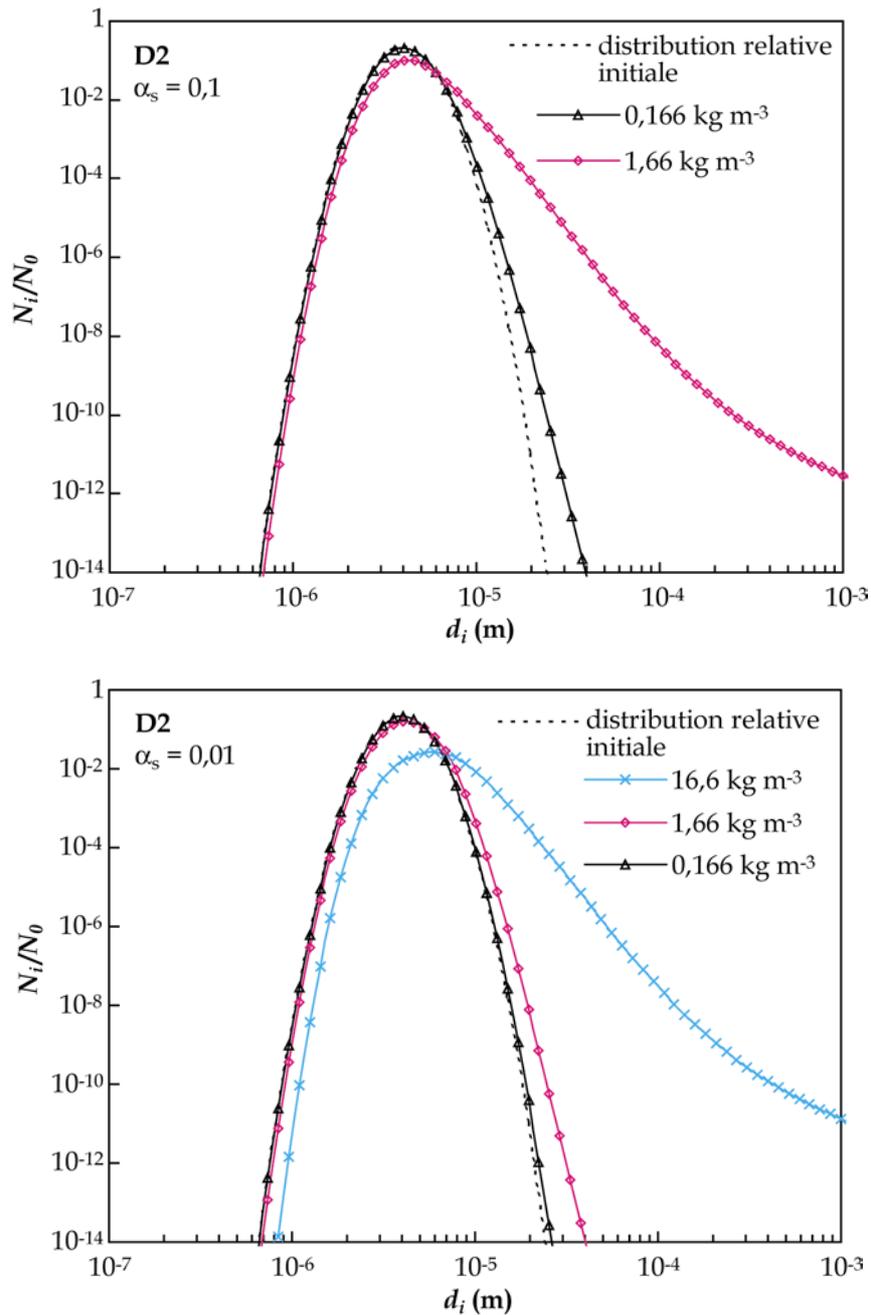
**Figure 4.20 :** Evolution des distributions D2 et D3 par agglomération brownienne et par sédimentation différentielle ( $T = 1800$  K, concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ ,  $\alpha_s = 0,1$ )

Si l'on diminue la température, l'évolution des distributions est plus prononcée : la figure 4.21 qui représente l'allure de la distribution D2 après 5 s d'agglomération à  $T = 1800$  K, 1400 K, 1000 K et 500 K montre que la formation des grosses particules s'accroît lorsque la température diminue. Ceci s'explique par le fait que le noyau d'agglomération augmente lorsque la température diminue (augmentation de la masse volumique des particules et diminution de la viscosité du gaz).



**Figure 4.21 :** Influence de la température sur l'agglomération par sédimentation différentielle – Evolution de la distribution D2 après 5 s d'agglomération (concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ )

La concentration initiale de particules joue également un rôle important dans l'agglomération par sédimentation différentielle. La figure 4.22 montre l'évolution de la distribution D2 après 5 secondes d'agglomération à  $T = 1800 \text{ K}$ , pour différentes valeurs de concentration initiale et d'efficacité de capture. Lorsque l'efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle est supérieure à 0,01 et la concentration initiale à  $16,6 \text{ kg m}^{-3}$  (100 fois plus que la concentration de base), on observe une évolution irréaliste des distributions, les particules ayant tendance à s'accumuler dans les dernières sections. Ce phénomène est particulièrement marqué lorsque les concentrations particulières sont fortes. Ceci montre le rôle déterminant de l'efficacité de capture dans la dynamique de l'agglomération. Or, sa valeur est inconnue à ce jour, et paraît difficilement accessible expérimentalement. Notons que la prise en compte d'un mécanisme de fragmentation dans la description de l'évolution morphologique permettrait de limiter l'apparition des grosses particules et la dispersion des distributions qui sont les moteurs de l'agglomération par sédimentation différentielle. Cependant, la modélisation de ce phénomène nécessite également la connaissance de paramètres caractéristiques tout aussi difficiles à déterminer. Faute de données suffisantes et suivant les préconisations de Lee et al (2000), nous utiliserons une efficacité de capture de 0,01, pour la suite des calculs faisant intervenir ce phénomène d'agglomération.



**Figure 4.22 :** Influence de la concentration initiale sur l'agglomération par sédimentation différentielle – Evolution de la distribution D2 après 5 s d'agglomération pour une efficacité de capture de 0,1 et de 0,01

### Agglomération turbulente

Pour étudier l'influence de l'agglomération turbulente sur l'évolution morphologique des particules, nous avons choisi trois conditions de turbulence correspondant à celles que l'on peut rencontrer au four électrique :

- enceinte du four (T1) que l'on assimile à une conduite de diamètre 2 m, débit de gaz :  $1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  soit une vitesse de gaz de  $0,318 \text{ m s}^{-1}$  (turbulence faible) ;

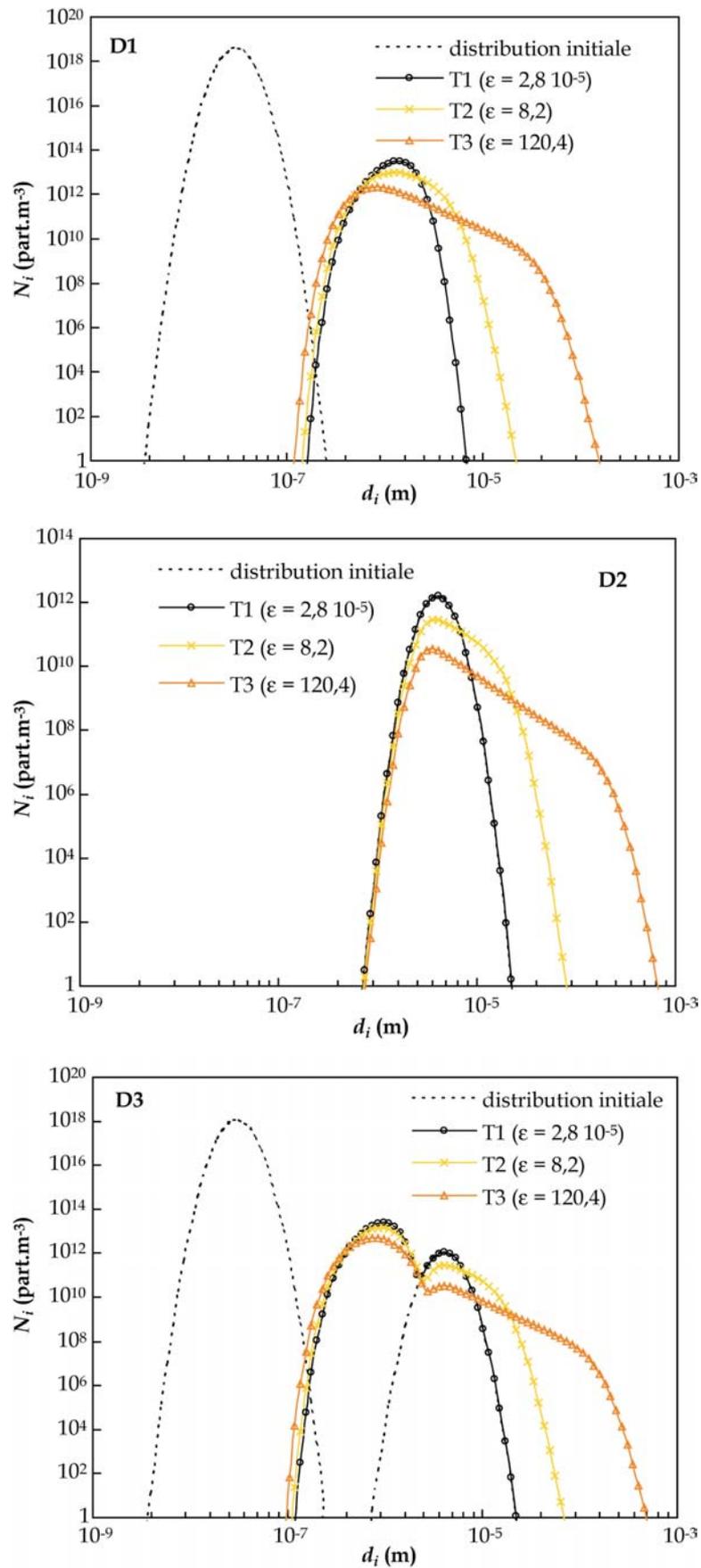
- partie large du circuit de captage (T2) : diamètre de la conduite : 0,3 m, débit de gaz :  $1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  soit une vitesse de gaz de  $3,54 \text{ m s}^{-1}$  (turbulence moyenne) ;
- partie étroite du circuit de captage (T3) : diamètre de la conduite : 0,2 m, débit de gaz :  $1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  soit une vitesse de gaz de  $7,96 \text{ m s}^{-1}$  (turbulence forte).

Les calculs suivants tiennent compte de l'agglomération brownienne, du frittage mais pas de l'agglomération par sédimentation différentielle, sauf spécification. Le tableau 4.5 donne les valeurs de la vitesse de dissipation de l'énergie turbulente pour les différents cas que nous allons étudier.

**Tableau 4.5** : Valeurs de la vitesse de dissipation de l'énergie turbulente pour différentes conditions de température et de turbulence

	T = 500 K	T = 1000 K	T = 1400 K	T = 1800 K
<b>T1 (Q = <math>1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}</math>, <math>D_c = 2 \text{ m}</math>)</b>	$\varepsilon = 1,29 \cdot 10^{-5}$	$\varepsilon = 2,00 \cdot 10^{-5}$	$\varepsilon = 2,44 \cdot 10^{-5}$	$\varepsilon = 2,85 \cdot 10^{-5}$
<b>T2 (Q = <math>1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}</math>, <math>D_c = 0,3 \text{ m}</math>)</b>	$\varepsilon = 3,71$	$\varepsilon = 5,74$	$\varepsilon = 7,03$	$\varepsilon = 8,21$
<b>T3 (Q = <math>1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}</math>, <math>D_c = 0,2 \text{ m}</math>)</b>	$\varepsilon = 54,46$	$\varepsilon = 84,28$	$\varepsilon = 103,12$	$\varepsilon = 120,43$

La figure 4.23 montre l'évolution des distributions D1, D2 et D3 après 5 secondes d'agglomération dans les trois conditions de turbulence définies précédemment ; la température est fixée à 1800 K et la concentration initiale à sa valeur de base  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ . En conditions de faible turbulence (T1), les distributions sont similaires à celles obtenues lorsque l'agglomération brownienne est le seul mécanisme d'évolution pris en compte. En conditions de moyenne et de forte turbulence (T2 et T3), on observe un élargissement important des distributions. L'agglomération des particules dont la taille est supérieure à  $1 \mu\text{m}$  est favorisée alors que l'agglomération des fines particules est légèrement inférieure à celle observée en l'absence de turbulence ; ce phénomène s'explique surtout par la diminution de la concentration particulaire dans les classes intermédiaires (autour de  $1 \mu\text{m}$ ) en raison de l'agglomération turbulente. Dans le cas des populations D2 et D3, on constate également la formation en quantité importante de particules de tailles supérieures à  $100 \mu\text{m}$  en conditions de forte turbulence.



**Figure 4.23 :** Evolution des distributions D1, D2 et D3 après 5 secondes d'agglomération dans différentes conditions de turbulence ( $T = 1800$  K, concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ )

Le tableau 4.6 donne la taille moyenne des agglomérats, le nombre relatif total d'agglomérats et la fraction numérale et volumique (respectivement  $f_{N,>100}$  et  $f_{v,>100}$ ) d'agglomérats dont la taille est supérieure à 100  $\mu\text{m}$ , pour chacune des distributions, après 5 secondes d'agglomération en conditions de faible, moyenne et forte turbulence. On peut remarquer que pour la population D2, l'augmentation de l'intensité de la turbulence entraîne une augmentation de la taille moyenne des agglomérats. En revanche pour les populations D1 et D3, on observe plutôt une diminution de la taille moyenne des agglomérats due à une moindre agglomération des fines particules et à l'élargissement des distributions qui en découle. Par ailleurs, l'augmentation de l'intensité de la turbulence entraîne une diminution du nombre d'agglomérats quelle que soit la population considérée.

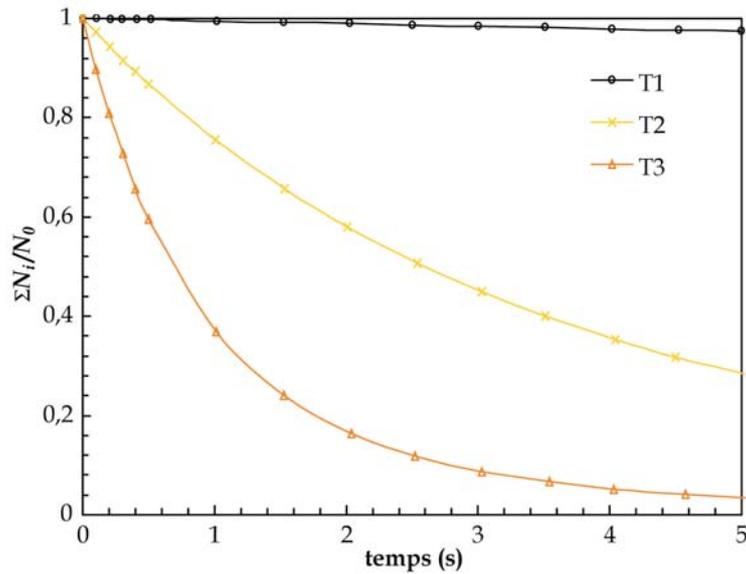
**Tableau 4.6 :** Caractéristiques moyennes des populations D1, D2 et D3 après 5 secondes d'agglomération dans différentes conditions de turbulence ( $T = 1800 \text{ K}$ , concentration initiale :  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ )

		$\varepsilon = 2,8 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-3}$	$\varepsilon = 8,2 \text{ m}^2 \text{ s}^{-3}$	$\varepsilon = 120,4 \text{ m}^2 \text{ s}^{-3}$
<b>D3</b>	$d_{p,\text{moyen}} \text{ (m)}$	$1,05 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$8,7 \cdot 10^{-7}$
	$\Sigma N_i / N_0$	$2,9 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$7,6 \cdot 10^{-6}$
	$f_{N,>100}$	$5,25 \cdot 10^{-47}$	$3,57 \cdot 10^{-19}$	$1,56 \cdot 10^{-6}$
	$f_{v,>100}$	$1,69 \cdot 10^{-41}$	$7,63 \cdot 10^{-14}$	$2 \cdot 10^{-1}$
<b>D2</b>	$d_{p,\text{moyen}} \text{ (m)}$	$4,14 \cdot 10^{-6}$	$5,23 \cdot 10^{-6}$	$5,48 \cdot 10^{-6}$
	$\Sigma N_i / N_0$	$9,74 \cdot 10^{-1}$	$2,80 \cdot 10^{-1}$	$3,28 \cdot 10^{-2}$
	$f_{N,>100}$	$2,99 \cdot 10^{-44}$	$5,67 \cdot 10^{-16}$	$3,94 \cdot 10^{-4}$
	$f_{v,>100}$	$4,47 \cdot 10^{-40}$	$2,49 \cdot 10^{-12}$	$4,29 \cdot 10^{-1}$
<b>D1</b>	$d_{p,\text{moyen}} \text{ (m)}$	$1,34 \cdot 10^{-6}$	$1,50 \cdot 10^{-6}$	$1,27 \cdot 10^{-6}$
	$\Sigma N_i / N_0$	$1,07 \cdot 10^{-5}$	$5,14 \cdot 10^{-6}$	$1,19 \cdot 10^{-6}$
	$f_{N,>100}$	$4,38 \cdot 10^{-91}$	$9,22 \cdot 10^{-34}$	$3,20 \cdot 10^{-11}$
	$f_{v,>100}$	$1,18 \cdot 10^{-85}$	$1,90 \cdot 10^{-28}$	$1,57 \cdot 10^{-6}$

avec :  $f_{N,>100}$  fraction numérale de particules dont la taille est supérieure à 100  $\mu\text{m}$   
 $f_{v,>100}$  fraction volumique de particules dont la taille est supérieure à 100  $\mu\text{m}$

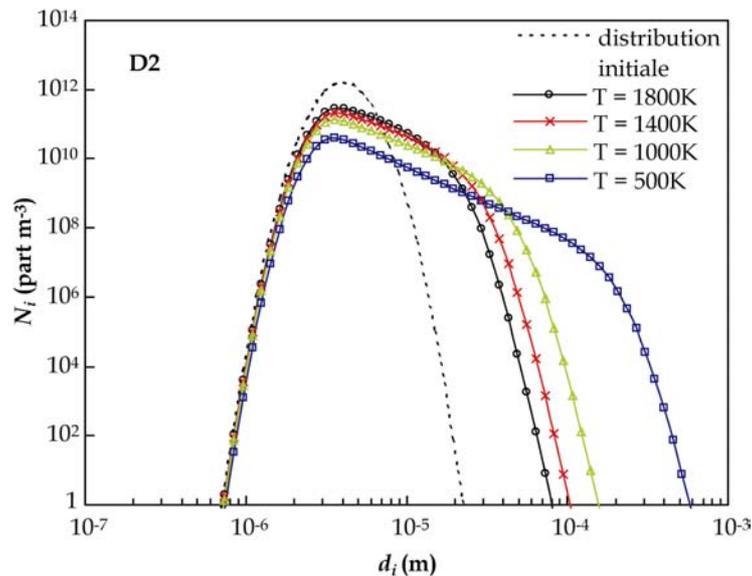
La figure 4.24 montre l'évolution du nombre relatif total d'agglomérats pour la population D2 dans différentes conditions de turbulence ; la température est fixée à 1800 K et la concentration initiale à  $0,166 \text{ kg m}^{-3}$ . La population D2 n'est quasiment pas affectée par l'agglomération brownienne ce qui permet de bien saisir la dynamique de l'agglomération turbulente. Comme on peut le voir, celle-ci est relativement lente par rapport à

l'agglomération brownienne. Quelles que soient les conditions de turbulence, un temps de séjour de quelques secondes est nécessaire pour obtenir une réduction conséquente du nombre de particules.



**Figure 4.24 :** Evolution du nombre relatif total d'agglomérats de la population D2, en fonction du temps pour différentes conditions de turbulence (T = 1800 K, concentration initiale : 0,166 kg m<sup>-3</sup>)

La figure 4.25 montre l'évolution de la distribution D2 après cinq secondes d'agglomération en conditions de turbulence moyenne (T2) pour T = 1800 K, 1400 K, 1000 K et 500 K.

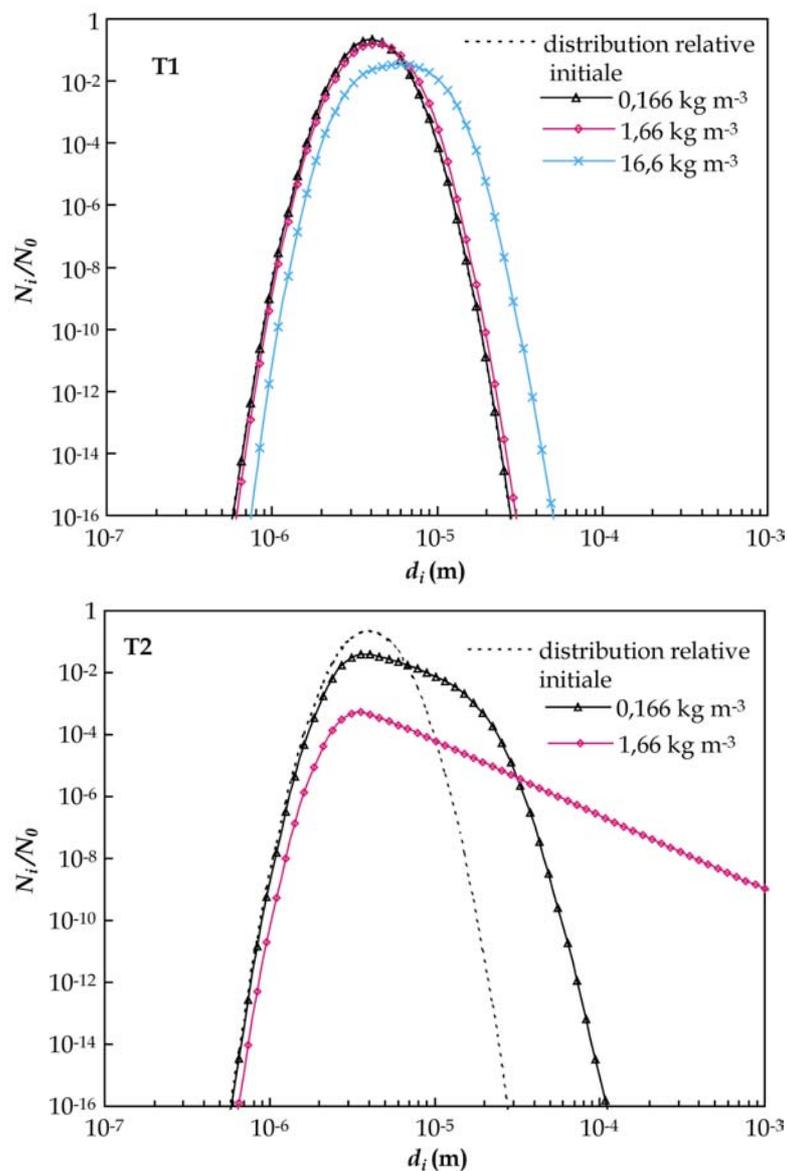


**Figure 4.25 :** Influence de la température sur l'agglomération turbulente (concentration initiale : 0,166 kg m<sup>-3</sup>, conditions de turbulence T2)

La diminution de la température favorise l'agglomération turbulente et entraîne la formation de gros agglomérats. Ceci s'explique par le fait que le noyau d'agglomération

turbulente est inversement proportionnel à la viscosité cinétique du gaz qui diminue avec la température. A 500 K, l'effet de la turbulence est d'autant plus marqué que les agglomérats ne frittent pas. Leur diamètre de collision est donc beaucoup plus grand ce qui favorise l'agglomération et la formation de gros agglomérats. Ainsi, après 5 secondes d'agglomération à  $T = 500$  K, les agglomérats dont la taille est supérieure à  $100 \mu\text{m}$  représentent près de 35 % du volume total de particules (rappel : nous entendons ici par taille le diamètre équivalent en volume des agglomérats et non leur diamètre de collision).

Nous avons également cherché à évaluer l'influence de la concentration initiale sur l'agglomération turbulente. Comme précédemment, nous avons fait varier la concentration initiale en multipliant la valeur de base par 10 et par 100. La figure 4.26 montre l'évolution de la population D2 pour ces valeurs de concentrations, en conditions de turbulence T1 et T2 ; la température est fixée à 1800 K.



**Figure 4.26 :** Influence de la concentration initiale sur l'agglomération turbulente – Evolution de la distribution D2 après 5 secondes d'agglomération en conditions T1 et T2 ( $T = 1800$  K)

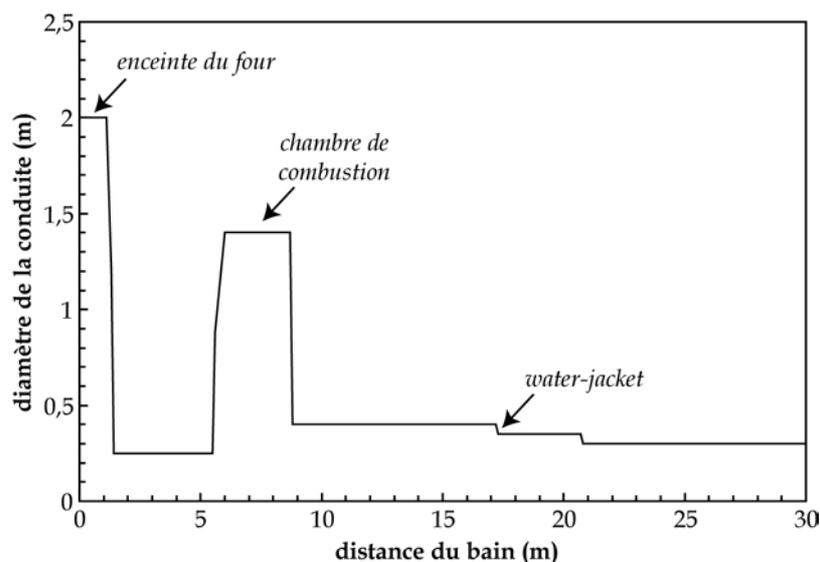
En condition T1, l'évolution des distributions est similaire à celle obtenue lorsque l'agglomération brownienne est le seul mécanisme pris en compte. En conditions T2, on observe la formation de très gros agglomérats lorsque la concentration initiale est fixée à  $1,66 \text{ kg m}^{-3}$ ; pour une concentration supérieure, les agglomérats se concentrent dans les classes les plus élevées (supérieures à 1 mm). En condition T3, on assiste au même phénomène lorsque la concentration est égale ou supérieure à  $1,66 \text{ kg m}^{-3}$ . Ce type d'évolution paraît peu crédible car les très gros agglomérats qui se forment pour des concentrations élevées sont extrêmement instables. Comme nous l'avons déjà mentionné, une description plus réaliste des phénomènes d'agglomération turbulente ou par sédimentation différentielle nécessiterait l'introduction dans le modèle d'un module décrivant la fragmentation des agglomérats.

#### IV.5.2. Application au cas du four électrique à arc

Le modèle a été appliqué au cas du four électrique à arc de l'IRSID, four pilote de 6 tonnes, dont les caractéristiques géométriques ainsi que les conditions de température, de débit et la composition du gaz dans les différentes parties du captage ont été décrites par Huber (2000).

##### *Description des paramètres de calcul*

La figure 4.27 donne le profil géométrique du four pilote. L'enceinte du four et les différentes portions du circuit de captage ont été assimilées à des conduites cylindriques de section variable. Les parties coudées sont considérées comme des portions droites dont la longueur est égale à la longueur parcourue au centre de la section.



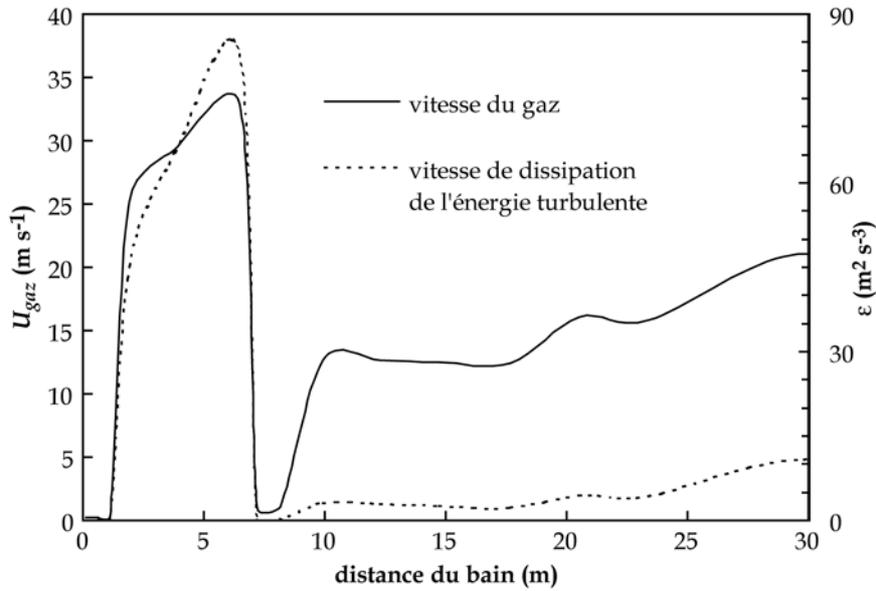
**Figure 4.27 :** Description simplifiée de la géométrie du four pilote 6 tonnes – Evolution du diamètre de la conduite en fonction de la distance au bain [d'après Huber (2000)]

Le tableau 4.7 donne les valeurs de température et de débit ainsi que la composition du gaz mesurées au cours d'une phase de décarburation au four pilote 6 tonnes. La colonne intitulée « sortie du captage » correspond à un point fictif, situé à 100 m du bain, destiné à tenir compte du refroidissement des fumées au-delà du water-jacket. A défaut d'une meilleure connaissance du profil de composition, de débit et de température des fumées, nous considérons une variation linéaire entre les trois points : bain, coude et water-jacket.

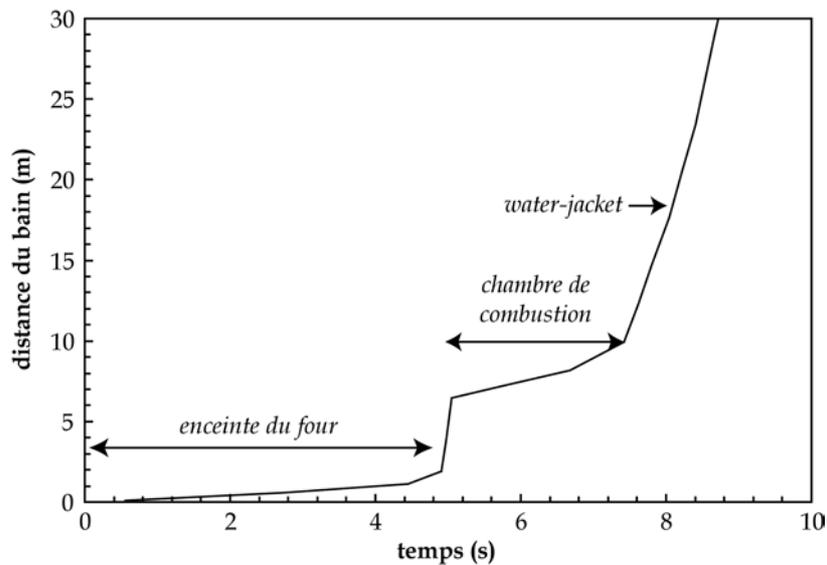
**Tableau 4.7 :** Données utilisées pour le calcul de l'agglomération au four électrique [Huber (2000)]

	<b>Au-dessus du bain</b>	<b>Sortie du four (coude)</b>	<b>Water-jacket</b>	<b>Sortie du captage</b>
<b>N<sub>2</sub> (%)</b>	0	70,4	77,65	77,65
<b>O<sub>2</sub> (%)</b>	0	0,07	11,25	11,25
<b>CO<sub>2</sub> (%)</b>	0	20,1	10,94	10,94
<b>CO</b>	100	9,43	0,16	0,16
<b>H<sub>2</sub> (%)</b>	0	0	0	0
<b>T (K)</b>	1800	1545	555	300
<b>Q<sub>gaz</sub> (m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>)</b>	0,5582	1,622	1,55	0,838

L'évolution du débit et de la température des fumées le long du circuit de captage permet de calculer la vitesse de transport des particules et la vitesse de dissipation de l'énergie turbulente tout au long du circuit de captage (voir figure 4.28) ainsi que la position des particules par rapport à la surface du bain en fonction du temps écoulé depuis leur émission (voir figure 4.29). Un tel calcul suppose un écoulement homogène et de type piston, une hypothèse forte notamment dans l'enceinte du four où il peut exister des zones très localisées de forte turbulence (zones d'injection de gaz et zone d'arc), ainsi que des boucles de recirculation.



**Figure 4.28 :** Variation de la vitesse du gaz et de la vitesse de dissipation de l'énergie turbulente en fonction de la position au-dessus du bain



**Figure 4.29 :** Position des particules en fonction du temps

A partir de ces données, nous avons cherché à décrire l'évolution morphologique de différentes populations de particules tout au long du circuit de captage. Nous avons tout d'abord considéré une population de particules provenant à la fois de la vaporisation du bain et de l'éclatement des bulles, similaire à la population D3 utilisée au § IV.5.2. Afin de tester l'influence de la distribution initiale de tailles de particules, nous avons fait varier la taille moyenne des particules issues de l'éclatement des bulles de 1 à 10  $\mu\text{m}$ . Quatre distributions bimodales ont ainsi été étudiées, chaque mode étant de type log-normal avec une dispersion de 2 :

- DF1 : population bimodale centrée sur 30 nm et 1  $\mu\text{m}$  ;
- DF2 : population bimodale centrée sur 30 nm et 4  $\mu\text{m}$  ;

- DF3 : population bimodale centrée sur 30 nm et 7  $\mu\text{m}$  ;
- DF4 : population bimodale centrée sur 30 nm et 10  $\mu\text{m}$ .

Le cas de base étudié ici correspond à une émission de 15 kg de poussières et 90  $\text{Nm}^3$  de CO émis pour une tonne d'acier, soit une concentration normale initiale de 0,166  $\text{kg Nm}^{-3}$ . 30 % de la concentration initiale est attribuée au premier mode qui correspond aux particules issues de la vaporisation, le reste étant attribué au second mode. Ce cas de base correspond à une répartition homogène des particules de poussières dans la phase gazeuse.

Nous avons également étudié le cas d'une émission de poussières provenant uniquement de la vaporisation du bain. La distribution correspondante, appelée DF5, est de type log-normale centrée sur 30 nm avec une dispersion de 2. La concentration initiale est de 0,0498  $\text{kg Nm}^{-3}$  (30 % de 0,166  $\text{kg Nm}^{-3}$ ).

Par ailleurs, le modèle a été adapté afin de tenir compte des variations de température au cours du transport des particules. En effet, écrit sous la forme développée au § IV.3 (équations (4.40), (4.41) et (4.42)), le bilan de population suppose implicitement un volume de gaz constant. Lorsque le volume de gaz varie, comme ici sous l'effet des variations de température, la densité de particules doit être remplacée par le nombre de particules présentes dans le volume de gaz  $V_{\text{gaz}}$  utilisé pour le calcul. Dans notre cas, les variations de  $V_{\text{gaz}}$  sont calculées à partir du volume initial  $V_0$  (fixé à 1  $\text{m}^3$ ), du débit initial de gaz  $Q_0$  et de l'évolution du débit réel dans le circuit de captage.

$$\frac{dV_{\text{gaz}}}{dz} = \frac{V_0}{Q_0} \frac{dQ_{\text{gaz}}}{dz} \quad (4.70)$$

### *Evolution morphologique d'une population de particules issues de la vaporisation et de l'éclatement des bulles*

Les figures 4.30 et 4.31 montrent l'évolution des distributions DF1, DF2, DF3 et DF4 au cours du captage ; la concentration initiale est fixée à 0,166  $\text{kg Nm}^{-3}$  et l'efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle à 0,01. La majorité des fines particules (< 500 nm) s'agglomèrent dans l'enceinte du four. Entre la sortie du four et la sortie du water-jacket, les distributions évoluent très peu. En revanche, entre la sortie du water-jacket et la fin du circuit de captage, on observe un appauvrissement des classes intermédiaires (entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ ) et l'apparition de gros agglomérats. Ceux-ci se forment par agglomération turbulente, favorisée dans cette partie du captage par des températures faibles, des valeurs de  $\varepsilon$  non négligeables et un temps de séjour relativement long. Le dépôt par thermophorèse est extrêmement faible puisqu'il représente moins de 0,1% du volume initial de particules. Sa prise en compte ne modifie pas l'évolution des distributions au cours du captage.

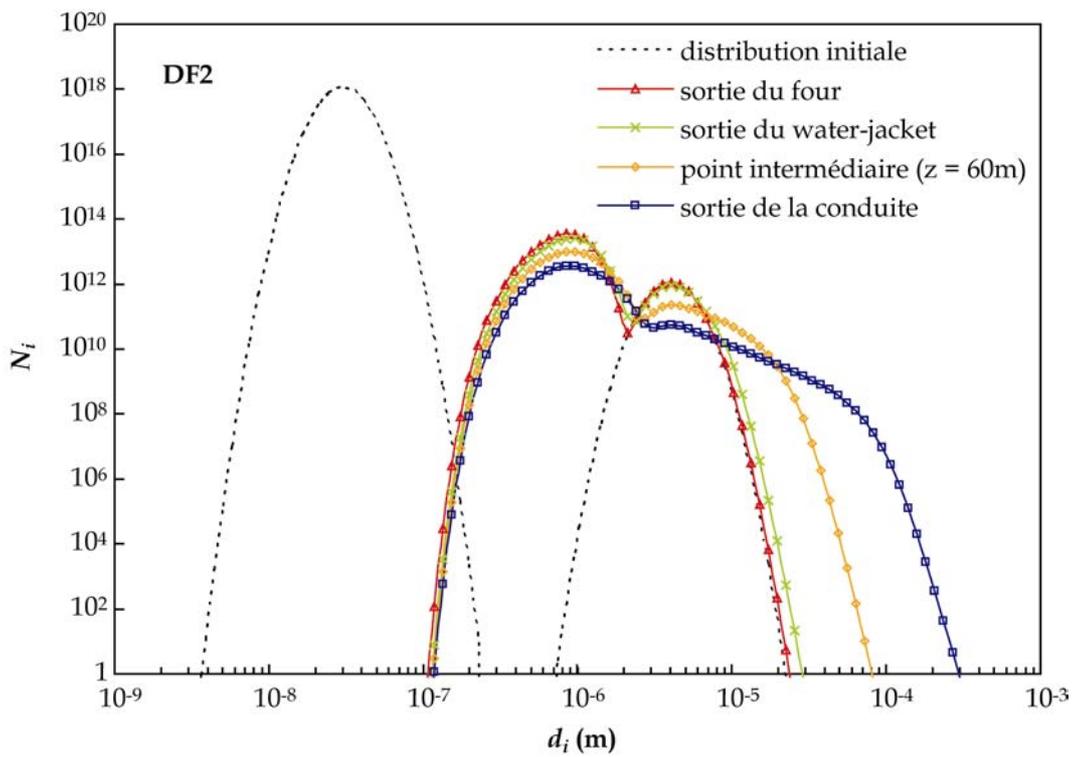
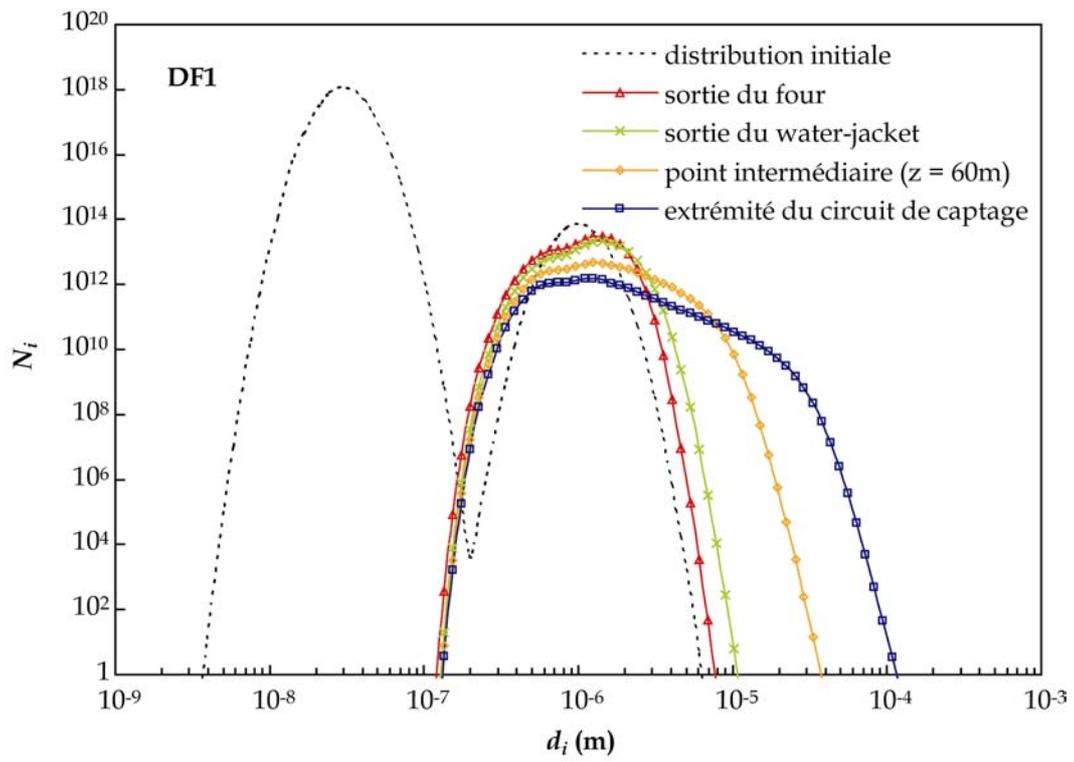
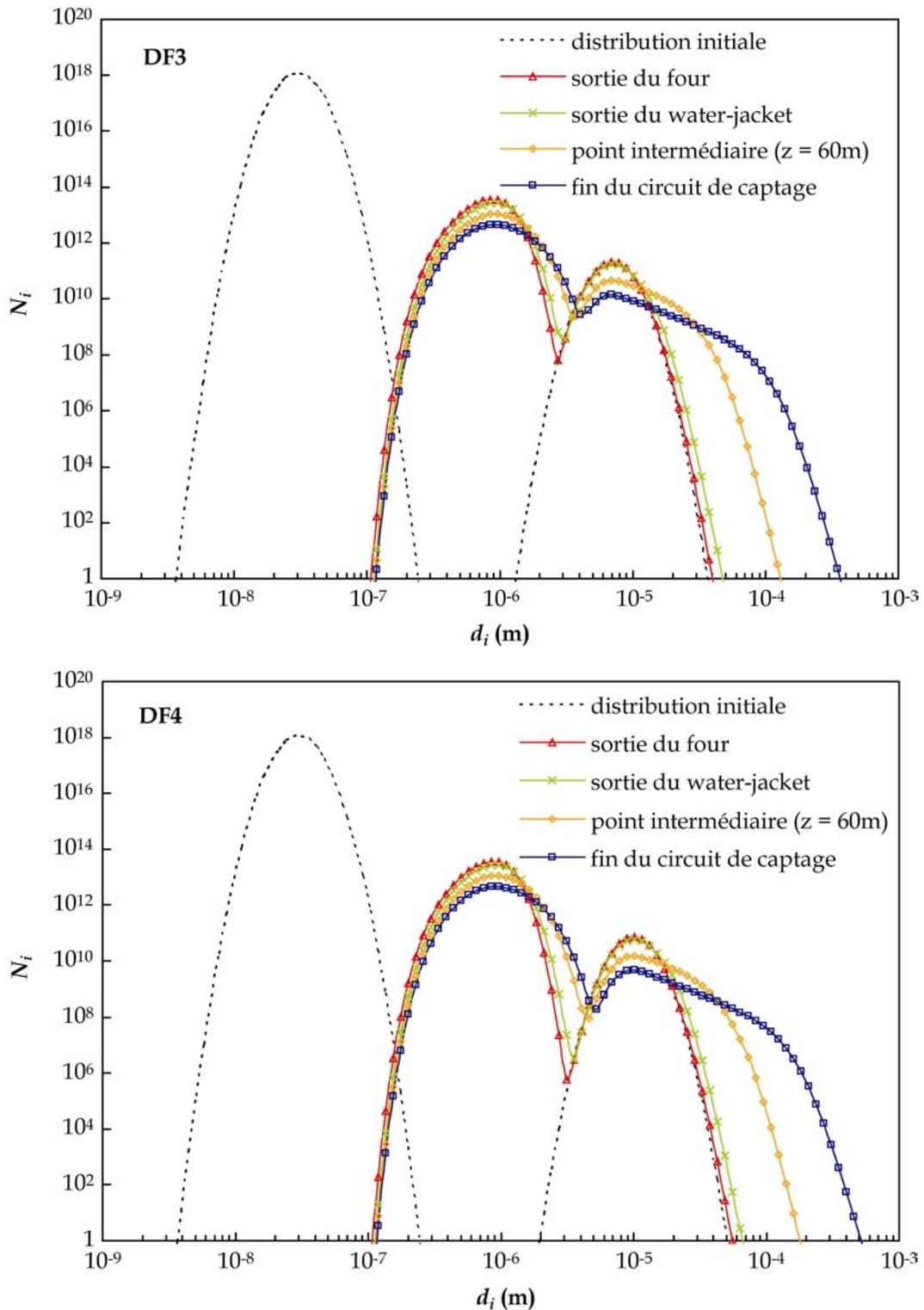


Figure 4.30 : Evolution des distributions DF1 et DF2 au cours du captage



**Figure 4.31** : Evolution des distributions DF3 et DF4 au cours du captage

L'influence de la nature de la distribution initiale est sensible, nous la commentons ci-dessous après avoir présenté le tableau 4.8, qui donne les principales caractéristiques des quatre distributions à l'instant initial, en sortie du four, en sortie du water-jacket et en sortie de la conduite de captage, c'est-à-dire : le diamètre équivalent en volume moyen des agglomérats ( $d_{moyen}$ ), le nombre relatif total d'agglomérats, la fraction volumique

d'agglomérats dont la taille est supérieure à 100  $\mu\text{m}$  ( $f_{v,>100}$ ) et inférieure à 100 nm ( $f_{v,<0,1}$ ), le nombre de particules (dans le volume) dont la taille est supérieure à 100  $\mu\text{m}$  ( $N_{>100}$ ) et inférieure à 100 nm ( $N_{<0,1}$ ).

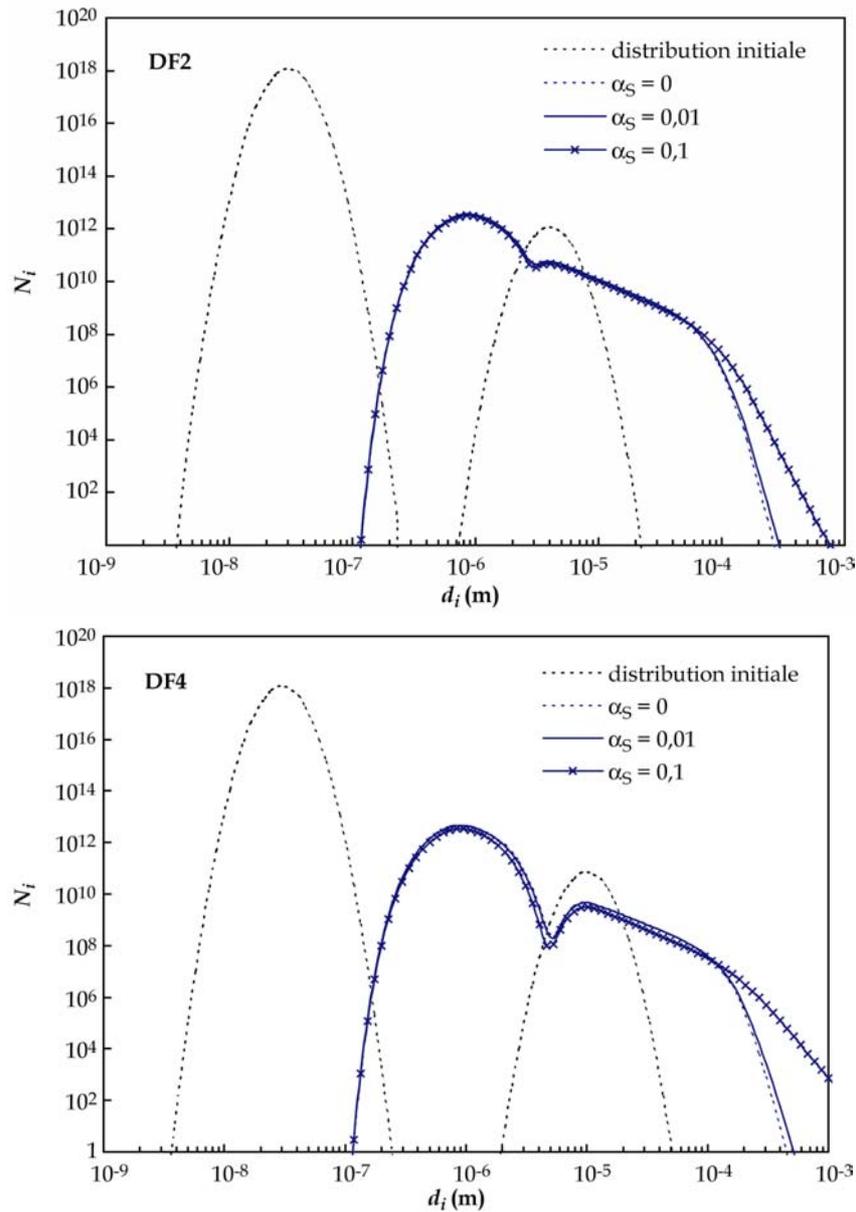
**Tableau 4.8 :** Caractéristiques moyennes des distributions en différents points du circuit de captage

		<b>t = 0</b>	<b>sortie du four</b>	<b>sortie du water-jacket</b>	<b>fin du circuit de captage</b>
<b>DF1</b>	$d_{\text{moyen}}$ (m)	$3,09 \cdot 10^{-8}$	$1,24 \cdot 10^{-6}$	$1,35 \cdot 10^{-6}$	$1,58 \cdot 10^{-6}$
	$\Sigma N_i/N_0$	1	$4,17 \cdot 10^{-5}$	$3,02 \cdot 10^{-5}$	$3,24 \cdot 10^{-6}$
	$f_{v,>100}$ (%vol)	$3,50 \cdot 10^{-83}$	$1,38 \cdot 10^{-54}$	$5,25 \cdot 10^{-43}$	$8,55 \cdot 10^{-7}$
	$f_{v,<0,1}$ (%vol)	30	$1,03 \cdot 10^{-25}$	$3,79 \cdot 10^{-28}$	$4,42 \cdot 10^{-29}$
	$N_{>100}$	$1,64 \cdot 10^{-76}$	$6,35 \cdot 10^{-48}$	$2,41 \cdot 10^{-36}$	3,77
	$N_{<0,1}$	$5,16 \cdot 10^{18}$	$7,96 \cdot 10^{-10}$	$2,91 \cdot 10^{-12}$	$3,40 \cdot 10^{-13}$
<b>DF2</b>	$d_{\text{moyen}}$ (m)	$3,08 \cdot 10^{-8}$	$9,28 \cdot 10^{-7}$	$9,99 \cdot 10^{-7}$	$1,05 \cdot 10^{-6}$
	$\Sigma N_i/N_0$	1	$4,07 \cdot 10^{-5}$	$3,09 \cdot 10^{-5}$	$5,22 \cdot 10^{-6}$
	$f_{v,>100}$ (%vol)	$9,81 \cdot 10^{-39}$	$3,55 \cdot 10^{-29}$	$2,04 \cdot 10^{-24}$	$8,53 \cdot 10^{-1}$
	$f_{v,<0,1}$ (%vol)	30	$1,93 \cdot 10^{-17}$	$6,95 \cdot 10^{-19}$	$9,05 \cdot 10^{-20}$
	$N_{>100}$	$4,64 \cdot 10^{-33}$	$1,66 \cdot 10^{-22}$	$9,56 \cdot 10^{-18}$	$3,49 \cdot 10^6$
	$N_{<0,1}$	$5,16 \cdot 10^{18}$	0,10	$3,65 \cdot 10^{-3}$	$4,74 \cdot 10^{-4}$
<b>DF3</b>	$d_{\text{moyen}}$ (m)	$3,08 \cdot 10^{-8}$	$8,83 \cdot 10^{-7}$	$9,48 \cdot 10^{-7}$	$1,04 \cdot 10^{-6}$
	$\Sigma N_i/N_0$	1	$4,13 \cdot 10^{-5}$	$3,17 \cdot 10^{-5}$	$6,77 \cdot 10^{-6}$
	$f_{v,>100}$ (%vol)	$1,18 \cdot 10^{-26}$	$2,76 \cdot 10^{-20}$	$4,55 \cdot 10^{-17}$	4,60
	$f_{v,<0,1}$ (%vol)	30	$3,21 \cdot 10^{-17}$	$1,22 \cdot 10^{-18}$	$1,82 \cdot 10^{-19}$
	$N_{>100}$	$5,59 \cdot 10^{-20}$	$1,29 \cdot 10^{-13}$	$2,12 \cdot 10^{-10}$	$1,73 \cdot 10^7$
	$N_{<0,1}$	$5,16 \cdot 10^{18}$	0,17	$6,42 \cdot 10^{-3}$	$9,55 \cdot 10^{-4}$
<b>DF4</b>	$d_{\text{moyen}}$ (m)	$3,08 \cdot 10^{-8}$	$8,71 \cdot 10^{-7}$	$9,26 \cdot 10^{-7}$	$1,03 \cdot 10^{-6}$
	$\Sigma N_i/N_0$	1	$4,16 \cdot 10^{-5}$	$3,25 \cdot 10^{-5}$	$7,04 \cdot 10^{-6}$
	$f_{v,>100}$ (%vol)	$1,18 \cdot 10^{-19}$	$2,36 \cdot 10^{-15}$	$1,09 \cdot 10^{-12}$	19,4
	$f_{v,<0,1}$ (%vol)	30	$3,75 \cdot 10^{-17}$	$2,33 \cdot 10^{-18}$	$3,37 \cdot 10^{-19}$
	$N_{>100}$	$5,57 \cdot 10^{-13}$	$1,10 \cdot 10^{-8}$	$5,07 \cdot 10^{-6}$	$5,90 \cdot 10^7$
	$N_{<0,1}$	$5,16 \cdot 10^{18}$	$1,97 \cdot 10^{-1}$	$1,22 \cdot 10^{-2}$	$1,77 \cdot 10^{-3}$

<i>avec :</i>	$f_{v,>100}$	<i>fraction volumique de particules dont la taille est supérieure à 100 <math>\mu\text{m}</math></i>
	$f_{v,<0,1}$	<i>fraction volumique de particules dont la taille est inférieure à 100 nm</i>
	$N_{>100}$	<i>nombre de particules dont la taille est supérieure à 100 <math>\mu\text{m}</math></i>
	$N_{<0,1}$	<i>nombre de particules dont la taille est inférieure à 100 nm</i>

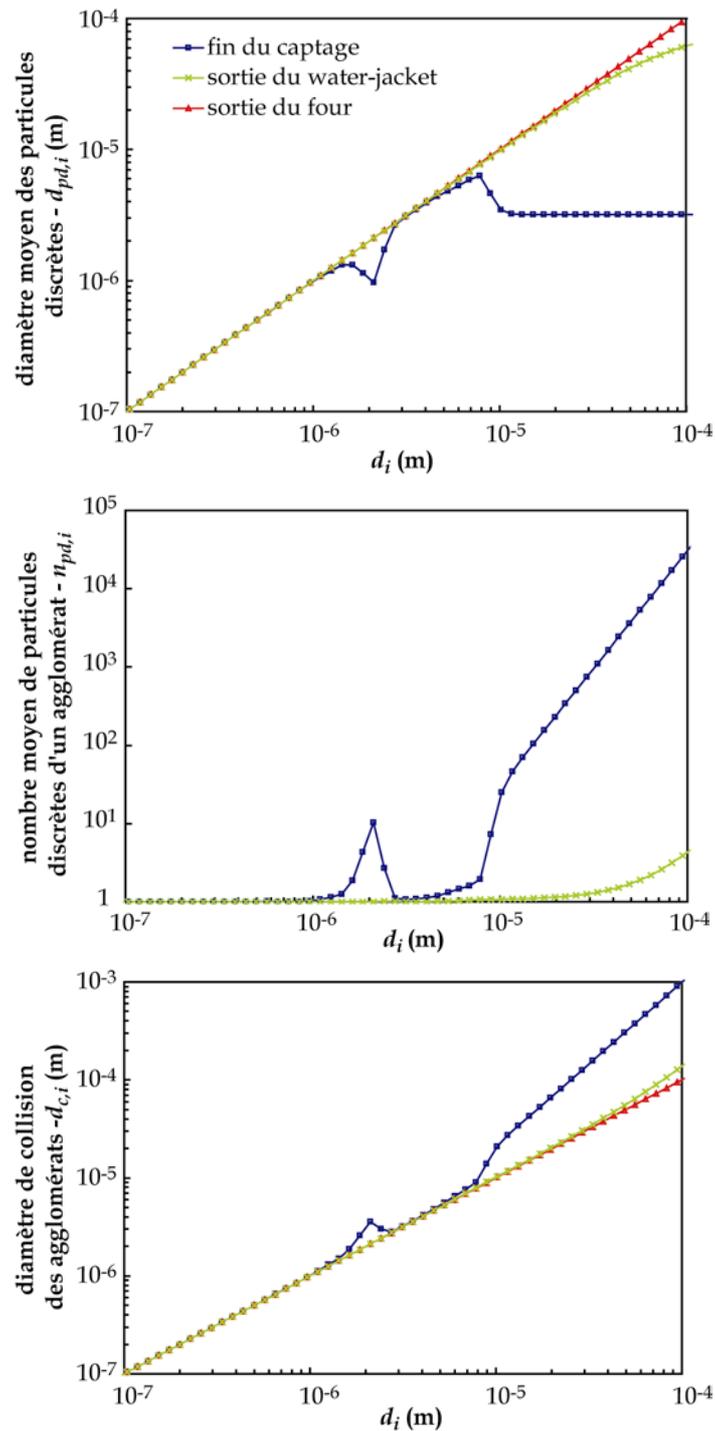
Quelle que soit la distribution considérée, les particules extrêmement fines (< 100 nm) s'agglomèrent très rapidement dans l'enceinte du four puisque leur nombre, dans le volume de calcul, passe de  $5,16 \cdot 10^{18}$  à moins de 1 particule entre leur émission et leur sortie du four. On constate néanmoins que la dynamique de l'agglomération des fines, due essentiellement à l'agitation brownienne, est plus importante pour la distribution DF1 que pour la distribution DF4 ; en d'autres termes, la diminution de la taille moyenne des particules issues de l'éclatement des bulles (ou gouttes de film) favorise l'agglomération brownienne. En effet, lorsque la taille moyenne des gouttes de film diminue, la concentration particulaire initiale augmente dans les classes de taille inférieure à 1  $\mu\text{m}$ , qui sont les plus touchées par l'agglomération brownienne. Ceci explique également pourquoi le nombre relatif total d'agglomérats augmente et la taille moyenne des agglomérats (diamètre équivalent en volume) diminue lorsqu'on passe de DF1 à DF4.

La part des gros agglomérats (> 100  $\mu\text{m}$ ) dans la population DF1 est négligeable tout au long du circuit de captage. Pour les populations DF2 et DF3, la présence de ces agglomérats en fin de captage reste relativement faible puisqu'ils constituent respectivement 0,85 % et 4,6 % du volume total de poussières. Il n'en va pas de même pour la population DF4 qui voit leur fraction passer de  $10^{-12}$  % à près de 20 % du volume total de poussières, entre la sortie du water-jacket et la fin du circuit de captage. Leur formation est due essentiellement à l'agglomération turbulente relativement intense à laquelle sont soumises les particules dans cette portion du captage. L'influence de l'agglomération par sédimentation différentielle reste, quant à elle, relativement limitée comme le montre la figure 4.32. Celle-ci représente l'allure des distributions DF2 et DF4 en fin de captage, pour différentes valeurs d'efficacité de capture :  $\alpha_s = 0$  (pas d'agglomération par sédimentation différentielle),  $\alpha_s = 0,01$  et  $\alpha_s = 0,1$ . Lorsque  $\alpha_s$  vaut 0,01, l'influence de la sédimentation différentielle est quasi nulle : l'évolution des distributions est similaire à celle obtenue en l'absence de sédimentation différentielle. En effet, bien que la dispersion des distributions soit forte, la concentration particulaire dans les classes élevées n'est pas suffisante pour permettre ce type d'agglomération. En revanche, lorsqu'on augmente la valeur de  $\alpha_s$ , l'agglomération par sédimentation différentielle vient renforcer l'effet de la turbulence et favorise la formation des gros agglomérats.



**Figure 4.32 :** Allure des distributions DF2 et DF4 en fin de circuit de captage pour différentes valeurs de  $\alpha_s$  (efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle)

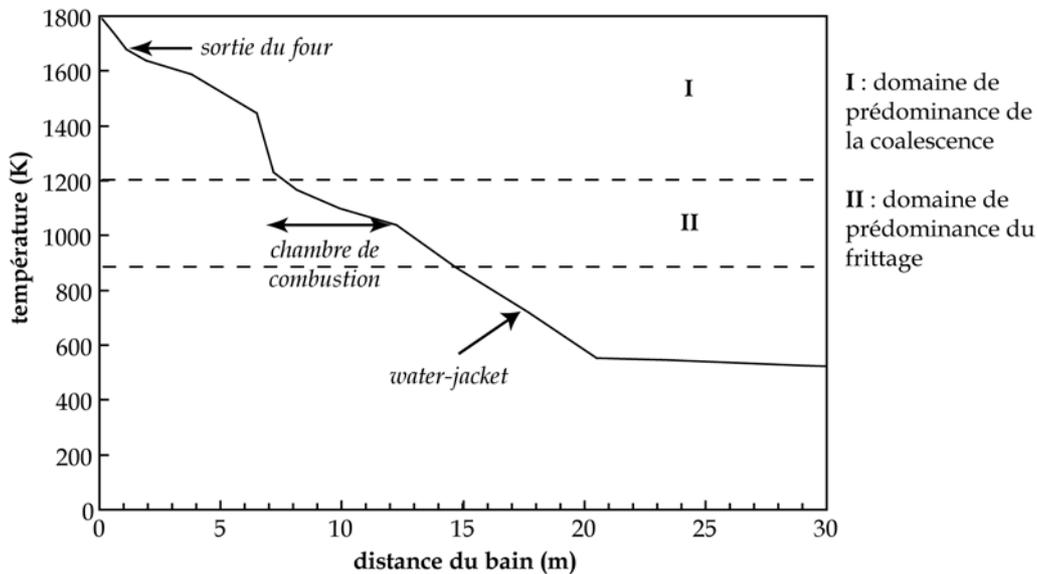
La figure 4.33 montre l'évolution des caractéristiques des agglomérats de la population DF2 (diamètre et nombre de particules discrètes constituant les agglomérats, diamètre de collision des agglomérats) en différents points du circuit de captage : sortie du four, sortie du water-jacket, fin du captage. Cette évolution a été calculée en fixant  $\alpha_s$  à 0,01 et la concentration initiale à  $0,166 \text{ kg Nm}^{-3}$ . Les caractéristiques morphologiques des trois autres distributions (DF1, DF3 et DF4) présentent des tendances similaires à celles observées pour la distribution DF2. Les données de la figure 4.33 doivent être considérées en gardant à l'esprit qu'il s'agit des caractéristiques moyennes de chacune des classes de particules, dans lesquelles peuvent être présentes à la fois des particules initiales et des agglomérats nouvellement formés.



**Figure 4.33 :** Evolution des caractéristiques des agglomérats de la population DF2 en différents points du captage (concentration initiale :  $0,166 \text{ kg Nm}^{-3}$ ,  $\alpha_s = 0,01$ )

A la sortie du four, les agglomérats sont totalement frittés et ont l'aspect de sphères compactes. A la sortie du water-jacket, on observe l'apparition de quelques agglomérats de type fractal mais la majorité des poussières sont encore constituées de sphères compactes. En revanche, entre le water-jacket et la fin du captage, les gros agglomérats qui se forment par agglomération turbulente sont constitués de plusieurs particules discrètes dont la taille moyenne est d'environ  $3 \mu\text{m}$ . On note aussi la formation d'agglomérats fractals de diamètre

inférieur (1 à 3  $\mu\text{m}$ ) qui proviennent de l'agglomération (sans coalescence) des particules plus fines. L'ensemble de ces résultats sont à rapprocher de l'évolution de la température dans les différentes parties du captage (voir figure 4.34).



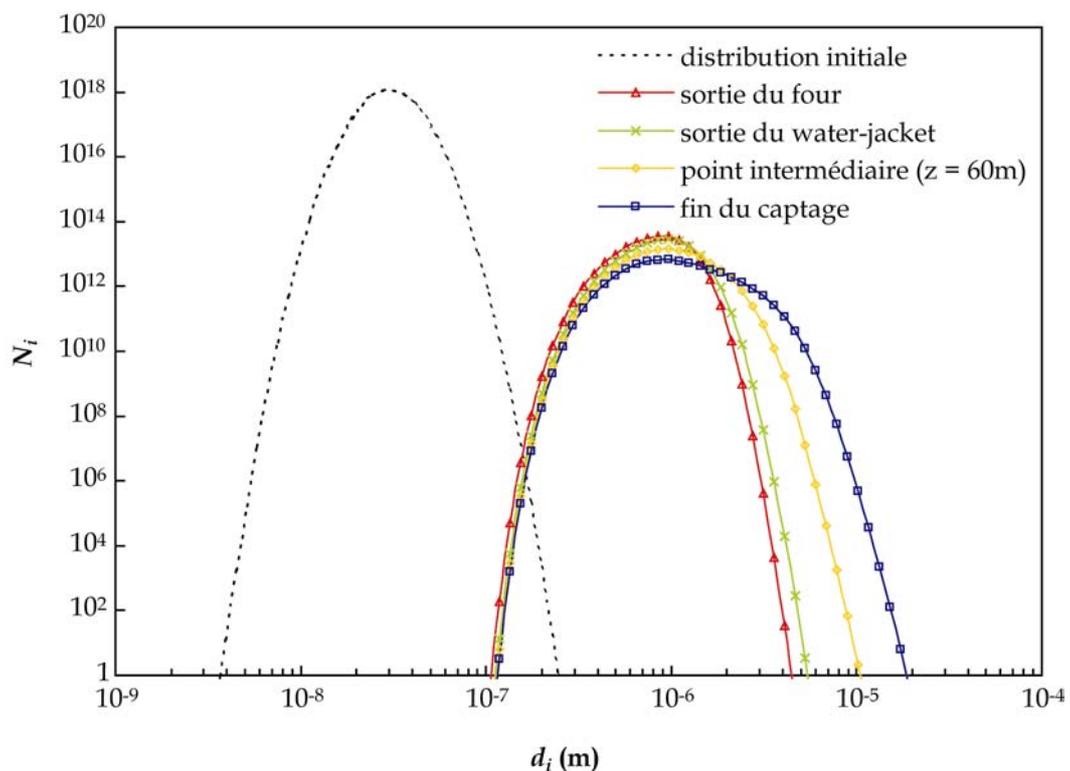
**Figure 4.34 :** Evolution de la température en fonction de la distance au bain

L'enceinte du four se situe dans un domaine de température élevée où prédomine la coalescence. Dans cette partie du captage, l'agglomération des fines particules par agitation brownienne est particulièrement intense et donne naissance à des agglomérats qui coalescent de façon quasi-instantanée en raison des faibles valeurs des temps caractéristiques de réduction de surface. On obtient alors des particules sphériques compactes dont la taille varie entre 100 nm et 2  $\mu\text{m}$  qui viennent s'ajouter aux particules micrométriques initialement présentes qui n'ont elles subi aucune modification morphologique. Bien qu'entre l'enceinte du four et le water-jacket les particules traversent le domaine de prédominance de la coalescence puis du frittage, les caractéristiques morphologiques des distributions évoluent peu car l'agglomération est extrêmement faible. Après le water-jacket, ce sont essentiellement les grosses particules qui sont affectées par l'agglomération turbulente. Dans cette partie du captage, le temps caractéristique de réduction de surface est extrêmement élevé et le frittage est négligeable. Les particules qui s'agglomèrent forment alors de gros agglomérats constitués de plusieurs particules discrètes. Au contraire, les particules fines qui ne subissent pas d'agglomération conservent l'aspect de sphères compactes. En fin de captage, les poussières sont donc composées de petites particules sphériques dont la taille varie entre 100 nm et quelques  $\mu\text{m}$  et de gros agglomérats de type fractal. Ces gros agglomérats qui peuvent représenter une part importante des poussières sont fragiles (du fait d'un très faible frittage) et il est probable qu'une partie d'entre eux se fragmentent au cours du transport. Comme nous l'avons précisé auparavant l'ajout d'un module décrivant la fragmentation permettrait d'affiner la description de l'évolution des distributions. Néanmoins, malgré les imprécisions et les nombreuses approximations du modèle, les résultats obtenus sont en bon accord, qualitatif et même quantitatif, avec la morphologie des particules observées dans les échantillons de poussières de four électrique (voir chapitre II).

Celles-ci sont composées essentiellement de particules sphéroïdales issues à la fois de la vaporisation du bain et de l'éclatement des bulles, ainsi que de gros agglomérats constitués eux-mêmes de particules plus fines. Il est ainsi intéressant de noter que les tailles prédites par le modèle sont très proches des ordres de grandeur de tailles de ces différentes catégories de particules : entre 0,1 et 5  $\mu\text{m}$  pour les particules discrètes et de 1  $\mu\text{m}$  à près d'1 mm pour les agglomérats. Certains échantillons contiennent également en quantité très limitée des particules de quelques  $\mu\text{m}$  présentant des signes de frittage. D'après nos calculs, celles-ci se sont probablement formées entre l'entrée de la chambre de combustion et le water-jacket.

### *Evolution morphologique d'une population de particules issues uniquement de la vaporisation*

La figure 4.35 montre l'évolution de la distribution DF5 et la figure 4.36 celle de la morphologie des agglomérats en différents points du circuit de captage. Le tableau 4.9 rassemble les principales caractéristiques de la distribution. L'efficacité de capture de l'agglomération par sédimentation différentielle a été fixée à 0,01 et les calculs ont été menés pour une concentration initiale de 0,166  $\text{kg Nm}^{-3}$ .



**Figure 4.35 :** Evolution de la distribution DF5 au cours du captage

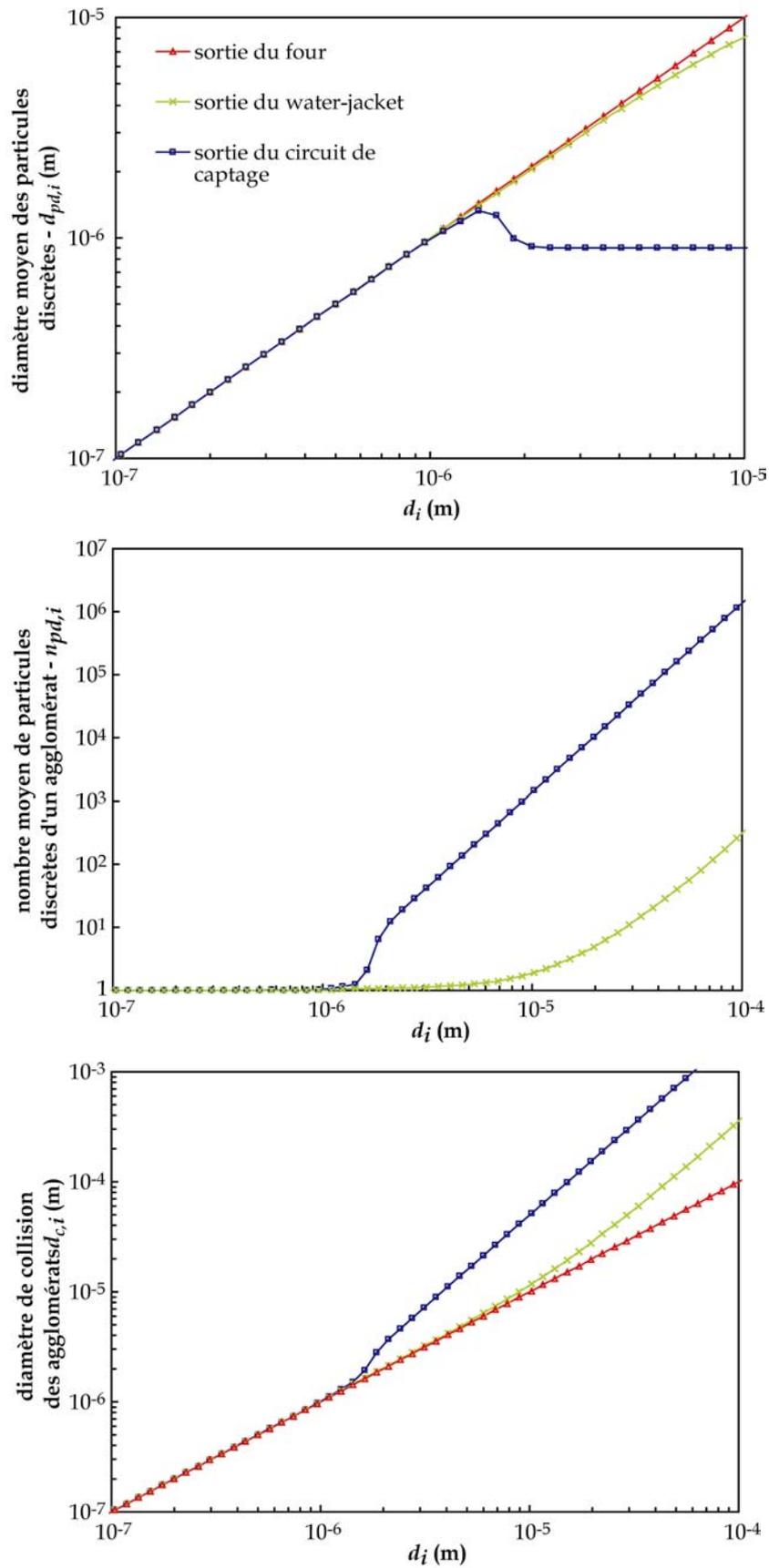


Figure 4.36 : Evolution des caractéristiques des agglomérats de la distribution DF5 au cours du captage

**Tableau 4.9 :** Principales caractéristiques de la distribution DF5 en différents points du captage

	t = 0	sortie du four	sortie du water-jacket	fin du captage
$d_{\text{moyen}} \text{ (m)}$	$3,08 \cdot 10^{-8}$	$8,58 \cdot 10^{-7}$	$9,22 \cdot 10^{-7}$	$1,13 \cdot 10^{-6}$
$\Sigma N_i/N_0$	1	$4,21 \cdot 10^{-5}$	$3,32 \cdot 10^{-5}$	$1,14 \cdot 10^{-5}$
$N_{<0,1}$	$5,15 \cdot 10^{18}$	0,24	0,009	0,001

L'agglomération est particulièrement intense dans l'enceinte du four, le nombre de particules étant divisé par plus de 20000 entre leur émission à la surface du bain et la sortie du four. Les agglomérats qui apparaissent à ce niveau coalescent entièrement et forment des sphères compactes. Entre la sortie du four et la sortie du water-jacket, la distribution évolue peu. En effet, dans cette partie du captage, l'intensité de la turbulence est faible et les particules sont trop peu nombreuses pour subir l'influence de l'agglomération brownienne. Après la sortie du water-jacket, on observe la formation d'agglomérats constitués de nombreuses particules discrètes. La taille moyenne de ces agglomérats varie entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ , tandis que leur diamètre de collision peut aller jusqu'à 100  $\mu\text{m}$ . Comme pour les autres distributions, la formation de ces agglomérats est liée à l'agglomération turbulente relativement intense et à l'absence de frittage dans cette partie du captage. Quant à l'agglomération par sédimentation différentielle, elle joue un rôle négligeable dans l'évolution de la distribution.

En chacun des points du circuit, le nombre de particules dont la taille est inférieure à 100 nm ( $N_{<0,1}$ ) est plus élevé pour la population DF5 que pour les populations DF1, DF2, DF3 et DF4 (voir tableaux 4.8 et 4.9). L'écart est particulièrement important entre la population DF1 et la population DF5. Il est probable que ceci soit dû à la présence dans la population DF1, de nombreuses particules comprises entre 500 nm et 1  $\mu\text{m}$ . Ces particules sont sensibles à l'agglomération brownienne et présentent un diamètre de collision élevé qui favorise leur agglomération avec les fines. Ainsi, en l'absence de particules provenant de l'éclatement des bulles, l'agglomération des fines particules est moins importante. Cependant, ce phénomène a un impact limité dans la configuration que nous étudions puisqu'à l'extrémité de la conduite de captage, il reste moins d'une particule dont la taille est inférieure à 100 nm dans le volume de calcul.

#### *Comparaison avec les résultats d'Huber (2000)*

Huber (2000) a développé un modèle numérique destiné à décrire l'évolution des poussières par agglomération et frittage lors de leur transport dans un système de captage présentant les mêmes caractéristiques que celui étudié ci-dessus. Le modèle et quelques résultats ont été présentés au § II.2.3. Bien qu'ils décrivent des phénomènes similaires, le modèle d'Huber (2000) et notre modèle reposent sur des approches différentes, ce qui rend le plus souvent la comparaison entre les résultats relativement délicate. Il faut notamment

rappeler que le modèle d'Huber (2000) est de type monodispersé, ce qui revient à considérer que toutes les particules de l'aérosol sont de même taille et évolue de la même façon. Au contraire, notre approche, bien qu'elle allonge considérablement les temps de calcul, est basée sur une discrétisation de l'espace des volumes de particules qui permet de prendre en compte la dispersion de taille des particules, particulièrement importante dans le cas des poussières de four électrique. Par ailleurs, une erreur de saisie s'étant introduite dans le code source du programme numérique d'Huber (2000), les résultats obtenus sont très différents pour les parties du captage où l'agglomération turbulente est intense (notamment entre la sortie du water-jacket et la sortie du captage).

Ainsi le modèle d'Huber (2000) prévoit que les particules n'évoluent pratiquement pas lorsque leur taille initiale est fixée à 1  $\mu\text{m}$  (ou à 10  $\mu\text{m}$ ) et la concentration initiale à 0,166  $\text{kg m}^{-3}$  (voir figures 2.27 et 2.28 au chapitre II). Il faut multiplier la concentration par 1000 voire par 10000 pour observer la formation de gros agglomérats constitués de nombreuses particules discrètes. Grâce à la prise en compte de la dispersion de taille et à l'amélioration de la description de l'agglomération turbulente, notre modèle donne au final des résultats plus détaillés et surtout plus proches des morphologies de particules mises en évidence dans les échantillons de poussières de four électrique. Ceci est particulièrement vrai pour la description de la formation des gros agglomérats qui apparaît très nettement dans nos simulations, même pour des concentrations initiales faibles.

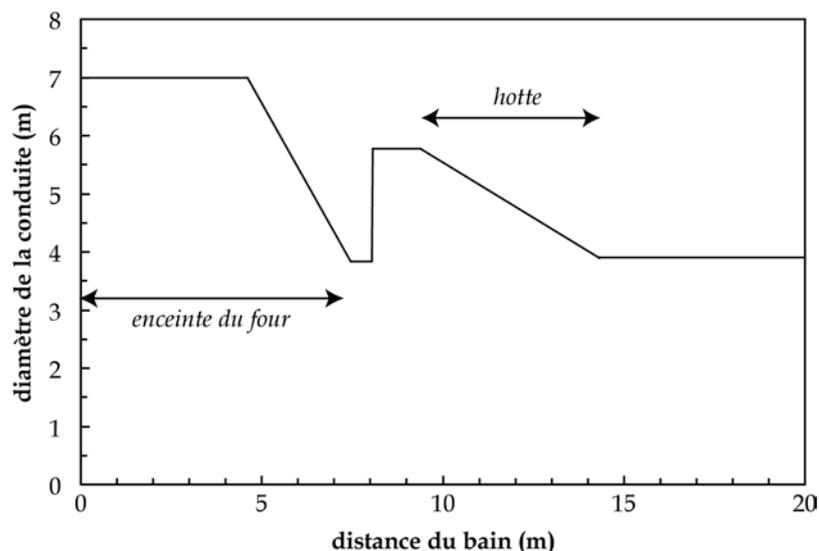
### IV.5.3. Application au cas du convertisseur

Le convertisseur est un réacteur sidérurgique permettant de transformer en acier la fonte liquide sortant des hauts fourneaux. La charge introduite est constituée essentiellement de fonte mais également de ferrailles. Le procédé est semblable par beaucoup d'aspects à celui mis en œuvre au four électrique (chauffage et fusion par un arc électrique, décarburation par injection d'oxygène, formation d'un laitier moussant qui réagit avec le métal liquide) mais les émissions de poussières sont légèrement inférieures : entre 10 et 15 kg par tonne d'acier produit. Leur origine est la même que celle des poussières de four électrique mais la part respective de chacun des mécanismes de formation diffère. Ainsi, les particules issues de la vaporisation sont peu nombreuses car la quantité de ferrailles dans la charge initiale est relativement faible. En revanche, les poussières contiennent beaucoup de grosses particules sphériques (taille comprise entre 50  $\mu\text{m}$  et quelques mm) dont la composition correspond à celle du métal et/ou du laitier. Leur présence est liée à un débit d'aspiration des fumées beaucoup plus élevé au convertisseur qu'au four électrique : une partie des gouttelettes projetées à l'impact de l'arc ou du jet d'oxygène ainsi que des gouttes de jet provenant de l'éclatement des bulles de CO sont aspirées dans le circuit de captage au lieu de retomber dans le bain comme au four électrique. La différence la plus manifeste concerne les particules sphériques inférieures à 20  $\mu\text{m}$  dont la formation a été attribuée à l'éclatement des bulles de CO. Alors qu'elles représentent plus de 60% des poussières au four électrique, ces particules sont quasiment absentes des poussières de convertisseur. Or la quantité d'oxygène injecté pour la décarburation étant la même dans les deux réacteurs

(environ 90 Nm<sup>3</sup> par tonne d'acier produite), les émissions de gouttes de film devraient également être similaires.

Pour tenter de comprendre le devenir des gouttes de film, le modèle d'agglomération a donc été appliqué au cas du convertisseur en considérant une population initiale constituées de particules microniques correspondant aux gouttes de film émises lors de l'éclatement des bulles, de particules fines issues de la vaporisation et de grosses particules. Les particules fines représentent 0,0017 kg Nm<sup>-3</sup> (valeur fixée arbitrairement) et sont centrées sur 30 nm. La quantité de gouttes de film est la même que celle évaluée pour le four électrique, soit 0,116 kg Nm<sup>-3</sup> et leur taille moyenne est fixée à 4 µm. Pour les grosses particules, nous nous sommes basés sur les mesures de Schoop et Oehler (1999) qui évaluent le flux de gouttelettes projetées par l'impact de la lance et de l'arc à 60 kg s<sup>-1</sup> au convertisseur. Sachant que le débit de CO est de 1440 Nm<sup>3</sup> min<sup>-1</sup> au dessus du bain, nous avons fixé la concentration initiale de grosses particules à 2,5 kg Nm<sup>-3</sup>. Ne connaissant pas de façon précise la distribution granulométrique de ces particules, nous avons testé deux valeurs de taille moyenne : la première est fixée à 50 µm et la distribution est alors appelée DC1, la deuxième est fixée à 150 µm et la distribution est notée DC2.

Le calcul a été effectué sur la première partie du captage uniquement (enceinte du convertisseur, hotte, portion de la cheminée sèche située avant le coude). A l'extrémité de la conduite sèche les fumées subissent un lavage, transformant ainsi la plus grande partie des poussières en boue. Ce procédé modifie considérablement les mécanismes d'agglomération des particules, et sa prise en compte nécessiterait l'utilisation d'un modèle d'agglomération différent. La figure 4.37 donne le profil géométrique typique d'un convertisseur. L'enceinte du four et les différentes portions du circuit de captage ont été assimilées à des conduites cylindriques de section variable.



**Figure 4.37 :** Description simplifiée de la géométrie d'un convertisseur - Evolution du diamètre de la conduite en fonction de la distance au bain [Huber (2004)]

Le tableau 4.10 donnent les valeurs de températures et de débit ainsi que la composition du gaz mesurées au cours d'une phase de décarburation. A défaut d'une meilleure connaissance du profil de composition, de débit et de température des fumées, nous considérons une variation linéaire entre les points de mesure.

**Tableau 4.10 :** Données utilisées pour le calcul de l'agglomération au convertisseur  
[Huber (2004)]

	au-dessus du bain	sortie du four	sortie de la hotte	sortie de la cheminée sèche
$T$ (K)	1873	1973	1697	673
$Q_{gaz}$ (m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> )	164,7	204,8	176,1	69,8
CO (%)	100	77	77	77
CO <sub>2</sub> (%)	0	8	8	8
O <sub>2</sub> (%)	0	0	0	0
N <sub>2</sub> (%)	0	15	15	15
H <sub>2</sub> (%)	0	0	0	0

Les calculs ont été menés pour une efficacité de capture  $\alpha_s$  fixée à 0,01. Quelle que soit la distribution considérée, on observe une agglomération très forte des particules qui ont tendance à s'accumuler dans la dernière classe. La figure 4.38 montre l'évolution des distributions DC1 et DC2 en différents points du captage. Les températures étant relativement élevées dans la partie du captage étudiée, les particules qui s'agglomèrent coalescent entièrement et forment des sphères compactes. L'agglomération brownienne touche essentiellement les particules fines issues de la vaporisation ; elle est particulièrement intense dans l'enceinte du four, où le nombre de particules fines est encore relativement élevé. Tout au long du circuit de captage, la sédimentation différentielle est le mécanisme d'agglomération le plus important. La présence de grosses particules mais également la différence de taille entre les particules, sont le moteur de ce type d'agglomération. Elle entraîne la formation de grosses particules qui favorisent l'agglomération des particules plus petites. Les distributions de taille rassemblées sur la figure 4.38 ne sont qu'une évaluation qualitative des phénomènes d'agglomération au convertisseur, cependant ces résultats numériques permettent d'expliquer en partie les différences de morphologie entre les poussières de four électrique et les poussières de convertisseur. Au convertisseur, les particules inférieures à 20  $\mu\text{m}$  issues de la vaporisation ou de l'éclatement des bulles s'agglomèrent avec les grosses projections entraînées dans le circuit de captage. Sous l'effet de la température, ces agglomérats coalescent entièrement. Ainsi, les poussières s'appauvrissent en fines particules tout au long du circuit de captage et au contraire s'enrichissent en grosses particules compactes de forme sphérique. Ce phénomène est encore plus flagrant lorsqu'on calcule l'évolution du nombre et du volume de particules de taille inférieure à 20  $\mu\text{m}$  dans le volume de calcul (respectivement  $V_{<20}$  et  $N_{<20}$ ) en fonction de la

distance parcourue dans la conduite (voir figure 4.39). Entre l'instant initial et l'arrivée dans la cheminée sèche (fin du calcul),  $V_{<20}$  passe de  $2 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3$  à  $3 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3$  pour la distribution DC1. Pour la distribution DC2,  $V_{<20}$  passe de  $1,5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3$  à  $9 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3$  ce qui représente une évolution plus radicale encore.

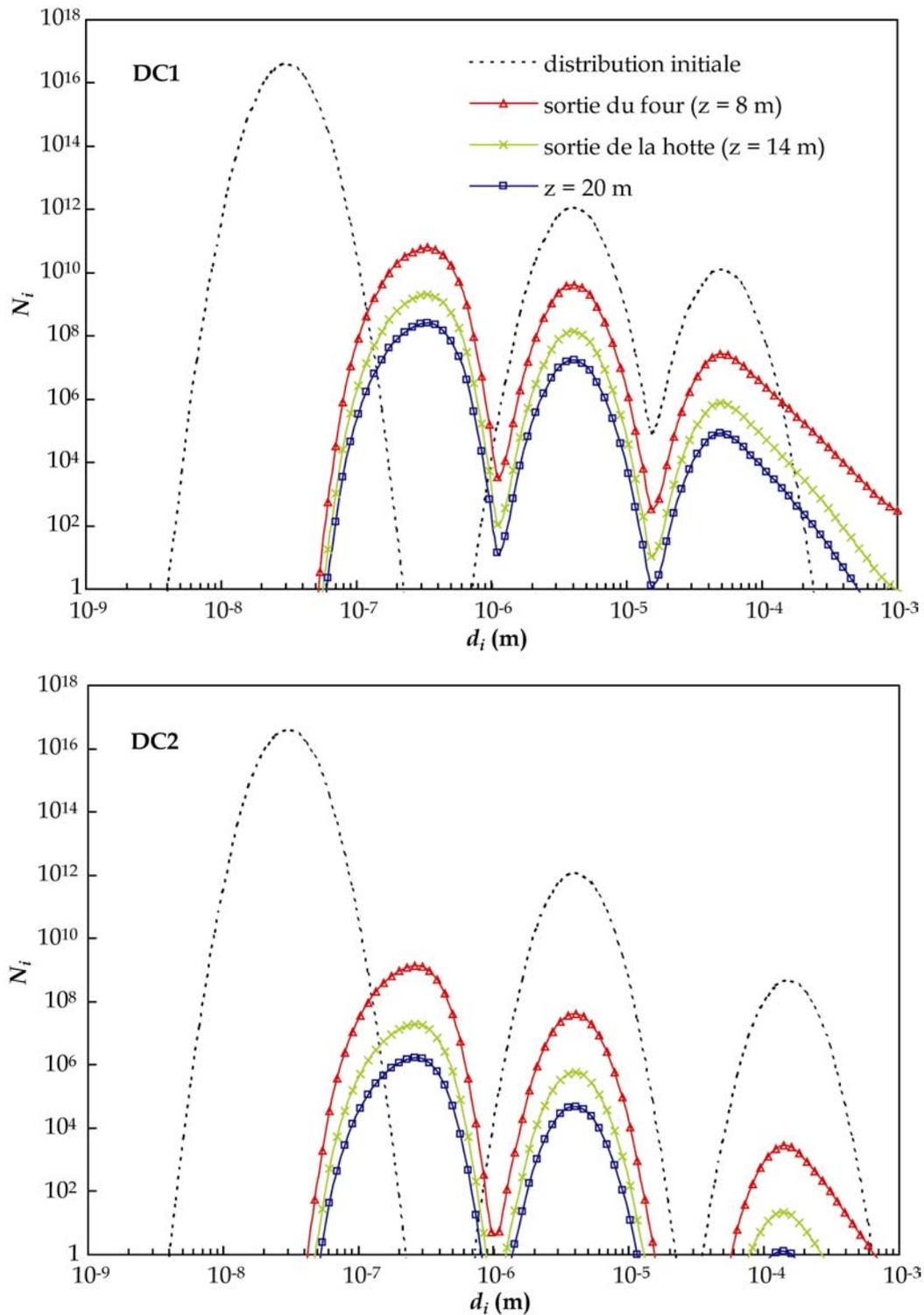
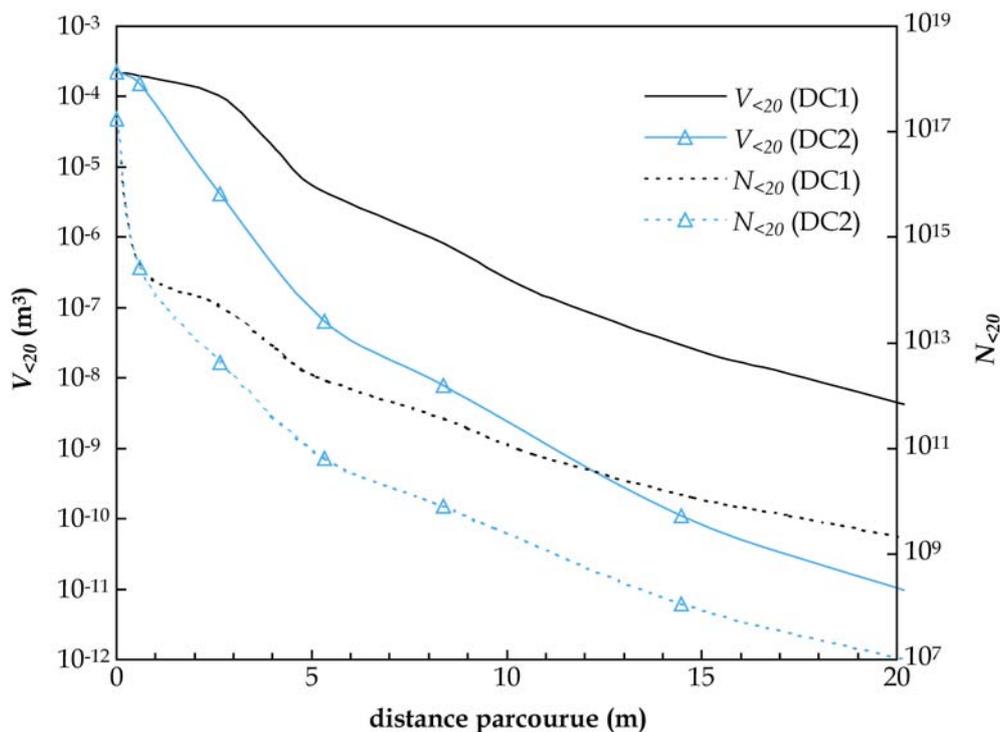


Figure 4.38 : Evolution des distributions DC1 et DC2 au cours du captage



**Figure 4.39 :** Evolution du nombre et du volume de particules dont la taille est inférieure à 20  $\mu\text{m}$ , en fonction de la distance parcourue dans le circuit de captage

La quantité de poussières émises au convertisseur est comprise entre 0,111 et 0,166  $\text{kg Nm}^{-3}$ . En supposant que ces valeurs sont représentatives des quantités de poussières présentes dans la cheminée sèche, on peut calculer la part que représentent les particules dont la taille est inférieure à 20  $\mu\text{m}$  dans les poussières à ce niveau du circuit de captage. Si l'on considère que la masse volumique moyenne des poussières est de 4000  $\text{kg m}^{-3}$  et si l'on ramène les valeurs de  $V_{<20}$  à 1  $\text{Nm}^3$  de gaz, on obtient une concentration de particules inférieures à 20  $\mu\text{m}$  de  $5,7 \cdot 10^{-5} \text{ kg Nm}^{-3}$  pour DC1, et de  $1,7 \cdot 10^{-7} \text{ kg Nm}^{-3}$  pour DC2. Cette catégorie de particules constitue donc entre 0,03 % et 0,05 % du volume des poussières au niveau de la cheminée sèche lorsque la distribution initiale est de type DC1. Avec une distribution initiale de type DC2, elle représente entre  $1 \cdot 10^{-4}$  et  $1,5 \cdot 10^{-4}$  % des poussières. Les hypothèses effectuées (distribution initiale) et les approximations du modèle doivent inciter à considérer ces chiffres avec prudence. Toutefois les conclusions semblent nettes et les ordres de grandeur obtenus sont assez proches des observations et des mesures effectuées sur des échantillons de poussières de convertisseur [Huber (2004)]. A titre de comparaison, ce type de particules représente plus de 80 % du volume de particules contenues dans les échantillons de poussières de four électrique (cf § II.1).

## IV.6. CONCLUSIONS

Après avoir étudié la formation des poussières, et plus particulièrement l'émission de précurseurs issus de l'éclatement de bulles de CO, nous avons cherché à modéliser leur évolution morphologique au cours de leur transport dans le circuit de captage. Le modèle développé décrit les phénomènes d'agglomération (brownienne, turbulente et par sédimentation différentielle), de coalescence, de frittage et de thermophorèse. La méthode de discrétisation que nous avons employée est adaptée des travaux de Kumar et Ramkrishna (1996) et permet de prendre en compte la dispersion de taille des particules étudiées.

La sensibilité du modèle à la température du gaz, à la concentration en particules et aux conditions d'aspiration (débit et diamètre de conduite) a été étudiée dans le cas d'une configuration simple (conduite cylindrique isotherme). Les agglomérats formés au cours du transport coalescent et forment des particules sphériques compactes tant que la température est supérieure à 900 K. Lorsque la température diminue, le temps caractéristique de réduction de surface augmente et devient largement supérieur au temps de séjour des particules dans les conduites. En s'agglomérant, celles-ci ont alors tendance à former des agglomérats de type fractal. L'agglomération brownienne concerne essentiellement les fines particules ( $< 1 \mu\text{m}$ ). Elle est extrêmement rapide et donne naissance à des agglomérats dont la taille moyenne avoisine  $1 \mu\text{m}$ . Bien que l'agglomération brownienne dépende de l'agitation thermique des particules (gazeuses ou solides), ce mécanisme d'évolution morphologique n'est presque pas influencé par la température. Les particules dont la taille est supérieure à  $1 \mu\text{m}$  évoluent peu par agglomération brownienne. En revanche, elles sont beaucoup plus sensibles à l'agglomération turbulente qui entraîne un étalement des distributions vers les tailles de particules élevées. Ce phénomène est d'autant plus important aux faibles températures, que le diamètre de collision des agglomérats formés est beaucoup plus grand en raison de l'absence de frittage et de coalescence. Contrairement à l'agglomération turbulente, l'agglomération par sédimentation différentielle a peu d'effet sur l'évolution des distributions lorsque l'efficacité de capture est inférieure ou égale à 0,01. Ce paramètre, mal connu, est très influent et, pour des valeurs supérieures, le modèle donne des résultats en termes de distribution de particules qui deviennent physiquement irréalistes.

Le modèle a ensuite été appliqué à deux cas concrets : le four électrique et le convertisseur. Dans le cas du four électrique, les résultats obtenus en termes de morphologie et de distributions de taille correspondent relativement bien aux observations effectuées par microscopie électronique sur des échantillons de poussières. Ils permettent en outre de mieux comprendre par quels mécanismes et dans quelle partie du captage se forment les différents types de particules. Ainsi, entre le moment où sont émis les précurseurs de poussières et la sortie du four, l'agglomération concerne surtout les fines particules qui proviennent pour l'essentiel de la vaporisation du bain. Celles-ci s'agglomèrent rapidement sous l'effet de l'agitation brownienne. En raison des fortes températures qui règnent dans l'enceinte du four, elles coalescent entièrement et forment des sphères compactes dont la taille moyenne avoisine  $1 \mu\text{m}$ . Entre la sortie du four et le water-jacket, les distributions évoluent peu. Après la sortie du water-jacket, les particules relativement fines ( $< 1 \mu\text{m}$ ) ne sont quasiment pas affectées par l'agglomération. En revanche, les particules issues de

l'éclatement des bulles (gouttes de film) s'agglomèrent sous l'effet de la turbulence, et forment de gros agglomérats fractals. Les températures étant relativement faibles dans cette partie du captage, ceux-ci ne frittent pas. Ainsi, les résultats obtenus montrent que la géométrie du circuit de captage et les conditions d'aspiration du four électrique sont globalement favorables à l'agglomération et à la coalescence des particules fines et à la formation de gros agglomérats. Les particules dont la taille est inférieure à 100 nm peuvent échapper aux capacités de rétention des filtres situés à l'extrémité de la conduite de captage et représenter ainsi un réel danger pour la santé. Le modèle montre que ces particules s'agglomèrent rapidement pour former des particules de quelques centaines de nm à plus de 1  $\mu\text{m}$ . En fin de captage, elles ne représentent plus qu'une part négligeable des particules contenues dans les poussières. Les gros agglomérats qui apparaissent dans la dernière partie du captage facilitent la manipulation ultérieure des poussières en limitant les risques de réenvol particulièrement importants lorsque les particules sont fines. Leur formation pourrait être favorisée en accentuant la turbulence de l'écoulement gazeux dans cette partie du captage.

Dans le cas du convertisseur, les résultats obtenus montrent que les conditions d'aspiration des fumées entraînent une forte agglomération par sédimentation différentielle des fines particules issues de la vaporisation du bain et de l'éclatement des bulles (gouttes de film) sur les grosses particules projetées à l'impact de l'arc ou du jet d'oxygène. La température étant très élevée, les agglomérats coalescent entièrement et forment de grosses particules sphériques compactes de plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$ , ce qui accroît encore l'agglomération. Ainsi, on comprend mieux pourquoi les poussières de convertisseur sont riches en grosses particules de plusieurs centaines de  $\mu\text{m}$  à plusieurs mm alors que la part de particules inférieures à 20  $\mu\text{m}$  est très faible. Bien que le procédé utilisé au convertisseur soit similaire à celui du four électrique, la morphologie et la granulométrie des poussières est très différente. La mise en place d'une stratégie de recyclage devra donc tenir compte des particularités de chacun des réacteurs.

En raison des approximations et du manque de données sur la morphologie et la granulométrie initiales des particules, on doit considérer que le modèle que nous avons développé ne donne qu'une évaluation qualitative de l'évolution des précurseurs de poussières au cours du captage, même si les ordres de grandeur des tailles des particules discrètes et des agglomérats sont ceux observés. Une description plus précise nécessiterait notamment une meilleure connaissance des paramètres du frittage et de l'agglomération par sédimentation différentielle ainsi que la prise en compte des phénomènes de fragmentation et d'interaction chimique entre les particules. Enfin, pour obtenir une modélisation globale du comportement des particules, il serait également nécessaire de coupler ce modèle avec une modélisation fine de l'écoulement du gaz porteur dans le four et dans les conduites de captage.



# Conclusion générale

Le four électrique à arc est un réacteur sidérurgique destiné au recyclage des ferrailles, qui génère entre 15 et 25 kg de poussières par tonne d'acier produit. D'après la législation française, ces poussières, riches en fer et en zinc, sont toxiques pour l'environnement et doivent être stockées en centres de stockage des déchets ultimes de classe I. Avec la généralisation du recyclage, la production d'acier par la filière électrique s'est rapidement développée au cours des trente dernières années entraînant une augmentation des coûts liés à la gestion des poussières. A ces contraintes économiques, s'ajoutent des exigences environnementales croissantes qui ont conduit les sidérurgistes à envisager les poussières non plus comme des déchets mais comme une ressource potentielle du fait de leur teneur élevée en zinc. Dans ce cadre, des politiques innovantes ont été impulsées avec un double objectif :

- développer des techniques de recyclage et de valorisation des poussières,
- adapter et optimiser le procédé d'élaboration de l'acier au four électrique à arc afin d'une part d'améliorer la part valorisable des poussières (zinc) et d'autre part de réduire les émissions et notamment les émissions d'éléments tels que le fer qui ne peuvent être valorisés.

Notre étude qui s'inscrit dans cette démarche vise à mieux comprendre et à quantifier les mécanismes de formation des poussières. Il s'agit à terme d'identifier des moyens d'action permettant de maîtriser la production de poussières au four électrique à arc.

La première étape de cette étude a été consacrée à l'analyse de la bibliographie relative aux poussières de four électrique et à leurs mécanismes de formation. Les nombreux travaux visant à caractériser les particules contenues dans les poussières fournissent de précieux indices pour comprendre leur genèse et leur évolution, depuis leur émission dans l'enceinte du four jusqu'à leur capture par les filtres d'épuration des fumées. La connaissance de la morphologie, de la composition et de la granulométrie des poussières nous a ainsi conduits à distinguer deux étapes dans le processus de formation :

- l'émission de précurseurs de poussières qui correspondent à la formation, dans l'enceinte du four, de vapeurs, gouttes liquides et particules solides ;
- la transformation de ces précurseurs en poussières au cours du captage.

L'éclatement des bulles de CO provenant de la décarburation du bain d'acier constitue le principal mécanisme d'émission. Il donne naissance à de fines gouttelettes (quelques centaines de nm à une vingtaine de  $\mu\text{m}$ ) contenant des éléments issus du bain métallique et/ou du laitier. Celles-ci sont facilement entraînées dans les conduites de captage et représentent in fine environ 60 % de la masse totale de poussières. La volatilisation est également une source importante de précurseurs, puisque la part des éléments volatils dans les poussières est d'environ 30%. Il s'agit essentiellement de zinc, mais on retrouve

également du plomb, du cadmium... La littérature montre qu'il existe deux mécanismes prépondérants de volatilisation au four électrique à arc : la volatilisation du zinc présent à la surface des ferrailles au cours de l'étape de fusion et la volatilisation des espèces dissoutes dans le bain, notamment par effet de lavage par les bulles de CO, pendant la phase d'affinage et de décarburation. Les vapeurs formées peuvent conduire à la formation de fines particules de poussières (quelques dizaines de nm à 1 ou 2  $\mu\text{m}$ ) ou réagir avec les autres précurseurs au cours du transport dans le circuit de captage. Outre l'éclatement des bulles et la volatilisation, il existe d'autres sources potentielles de précurseurs de poussières, telles que les projections à l'impact de l'arc et du jet d'oxygène, ou le réenvol direct de matériaux pulvérulents. Cependant, leur participation à la formation des poussières reste marginale car la majeure partie des particules qui en sont issues sont trop grosses (plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$  à quelques mm) pour être aspirées par le système de captage.

Après émission, les précurseurs de poussières vont ensuite s'agglomérer et subir un certain nombre de transformations physiques et chimiques au cours de leur transport dans l'enceinte du four et dans les conduites de captage des fumées. Ces transformations sont étroitement liées aux conditions opératoires (composition et température du gaz, débit d'aspiration, géométrie du système) dans lesquelles s'effectue ce captage. C'est notamment de ces paramètres que va dépendre le partage du zinc entre la forme zincite et la forme spinelle qui conditionne les possibilités de valorisation des poussières par la filière hydrométallurgique. Rappelons ici que notre étude s'inscrit dans la continuité du travail de Jean-Christophe Huber qui avait notamment décrit ce partage d'un point de vue thermodynamique et identifié les conditions opératoires théoriques favorisant la formation de la zincite.

A partir de cette synthèse bibliographique qui nous a permis d'identifier et de hiérarchiser les mécanismes de formation des poussières, nous nous sommes orientés vers l'étude des projections issues de l'éclatement des bulles de gaz qui constitue le principal phénomène d'émission au four électrique à arc. En se basant sur les nombreuses études menées dans le cas des systèmes air-eau, nous avons développé un dispositif expérimental de laboratoire permettant, d'une part de visualiser par vidéo rapide l'éclatement de bulles de gaz à la surface de l'acier liquide, et d'autre part, de quantifier et de caractériser les projections qui en découlent. Les séquences d'éclatement enregistrées révèlent le mode de rupture du film d'acier liquide soulevé par la bulle lorsqu'elle atteint la surface : le film peut se rompre soit à partir d'un point unique, soit en plusieurs points. La rupture est précédée de l'apparition sur le film d'une zone grisée, vraisemblablement de très faible épaisseur. A notre connaissance, c'est la première fois que ces processus ont été filmés. Les images mettent également en évidence la formation de deux catégories de projections : des gouttes de film issues de la fragmentation du film et des gouttes de jet issues de la désintégration du jet liquide qui se forme lorsque la cavité laissée par la bulle à la surface du bain se referme. La taille des gouttes de jet représente entre 12 et 18 % de la taille de la bulle mère. Les gouttes de film couvrent une gamme de taille qui varie de quelques centaines de nm à plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$ . Plus la taille de la bulle mère est élevée, plus la gamme de taille est étendue. Par ailleurs, la masse de gouttes de film décroît quand la taille de la bulle mère diminue et devient nulle lorsque celle-ci est inférieure à 4,5 mm. Pour des bulles dont la taille est supérieure à 6 mm, la quantité totale de matière projetée sous forme de gouttes de film varie de 16 à 30 g par  $\text{m}^3$  de gaz injecté. L'ajout d'une couche de laitier ne modifie pas ces résultats.

En revanche, l'ajout d'un tensioactif tel que le soufre dans le bain métallique entraîne une augmentation de la masse de gouttes de film. En associant ces résultats à une modélisation de la position de la bulle à la surface du bain avant son éclatement, nous avons pu mettre en évidence l'existence d'une relation linéaire entre la masse de gouttes de film et la surface du film.

Au four électrique à arc, le bain d'acier liquide est recouvert par une couche de laitier que l'on cherche à rendre moussant pour améliorer le rendement thermique du four. Or les émissions liées à l'éclatement de bulles à la surface d'une mousse se limitent aux seules gouttes de film. En présence d'un laitier moussant, les gouttes de jet se forment uniquement dans les zones dégagées comme à l'impact de l'arc ou du jet d'oxygène. Par ailleurs, si l'on tient compte de la gamme de taille supposée des bulles de CO qui se forment au four électrique à arc (entre 2 mm et 20 mm), on s'aperçoit que les gouttes de jet susceptibles d'être émises sont trop grosses pour être aspirées dans le système de captage des fumées. Pour la majorité d'entre elles, ces gouttes retombent dans le bain, participant ainsi aux échanges entre le métal et le laitier. Contrairement aux gouttes de jet, les gouttes de film sont extrêmement fines et peuvent donc facilement être entraînées dans le circuit de captage. Leur morphologie et leur taille correspondent aux particules présentes de façon majoritaire dans les poussières et les quantités émises dans le dispositif de laboratoire sont très proches de celles mesurées au four électrique à arc. Couplés à une analyse du procédé et des caractéristiques des poussières, les résultats obtenus à partir de notre dispositif expérimental montrent donc que les gouttes de film représentent la principale contribution à la formation de poussières.

Connaissant les caractéristiques des projections issues de l'éclatement des bulles de gaz, nous avons ensuite cherché à mieux comprendre leur évolution morphologique et granulométrique depuis leur émission dans l'enceinte du four jusqu'à leur capture par les filtres à manche. Pour y parvenir, nous avons développé un modèle numérique décrivant l'agglomération des particules par mouvement brownien, turbulence et sédimentation différentielle et intégrant les phénomènes de coalescence et de frittage ainsi que la thermophorèse. Basé sur la méthode de résolution des bilans de population de Kumar et Ramkrishna (1996), il permet de prendre en compte la dispersion de taille caractéristique des poussières de four électrique à arc. Le modèle a été appliqué à une population initiale de particules issues de la condensation des vapeurs métalliques et de l'éclatement des bulles de gaz évoluant dans une configuration simple puis dans les conditions d'aspiration rencontrées au four électrique à arc. Bien que ce modèle ne puisse être validé en l'état actuel des connaissances, les résultats donnés par le calcul en termes de morphologie et de granulométrie sont très proches des caractéristiques réelles des poussières. Ces simulations numériques ont permis notamment de préciser l'influence des conditions de captage (température, débit d'aspiration, géométrie des conduites) sur l'évolution des particules et de déterminer par quels mécanismes et dans quelles parties du captage se forment les différentes catégories de particules. Ainsi, l'enceinte du four, où règnent des températures élevées et des conditions de faible turbulence, est un lieu propice à l'agglomération et à la coalescence des fines particules ( $< 1 \mu\text{m}$ ) issues majoritairement de la vaporisation. Au contraire, dans la partie du circuit de captage située en aval du water-jacket, les conditions de turbulence relativement forte entraînent l'agglomération des particules issues de l'éclatement des bulles et la formation de gros agglomérats de type fractal. Ces agglomérats

sont peu compacts et donc relativement fragiles car la température dans cette partie du captage n'est pas suffisante pour permettre le frittage, même partiel, des particules.

D'un point de vue général, l'agglomération et le frittage des particules sont encore des phénomènes mal connus, surtout sur le plan expérimental, et leur mise en équation se heurte au manque de données relatives aux paramètres physiques qui les gouvernent. Malgré ses lacunes et ses approximations, notre modèle apparaît néanmoins comme un outil efficace pour décrire l'évolution des particules et déterminer les paramètres permettant de modifier leur morphologie et leur granulométrie. Bien que les conditions de captage au four électrique soient globalement favorables à la formation de gros agglomérats de particules microniques, on pourrait améliorer, en augmentant le frittage, la cohésion de ces agglomérats. Les possibilités de recyclage ou de valorisation dépendent en effet directement de la morphologie et de la granulométrie des poussières. La présence de particules fines, par exemple, est un facteur de risque dans toutes les opérations nécessitant une manipulation des poussières. Dans le cas d'une réinjection des poussières au four électrique, elle accroît le réenvol direct et limite l'efficacité du recyclage par cette méthode.

Pour résumer, ce travail de recherche, basé sur le développements d'outils expérimentaux et numériques, a permis d'approfondir notre connaissance des phénomènes de formation des poussières. A partir des résultats de cette étude, il nous est possible d'identifier des pistes de progrès pour une meilleure maîtrise des émissions au four électrique à arc.

### *Quelles solutions pour une réduction des émissions de poussières ?*

Comme nous l'avons vu précédemment, l'éclatement de bulles de gaz est le mécanisme d'émission le plus important puisque plus de 60% des poussières de four électrique en sont issues. Le reste provient essentiellement de la volatilisation de la charge (près de 30 % des poussières) et plus particulièrement de la vaporisation du zinc contenu dans les ferrailles. Ce second phénomène est inhérent au procédé, et plus particulièrement à l'emploi de ferrailles. Une diminution des émissions de poussières ne peut donc passer que par une bonne maîtrise des projections dues à l'éclatement des bulles de CO. Par ailleurs, la limitation des apports de particules dues à ce mécanisme présente l'avantage d'augmenter la teneur en zinc des poussières et ainsi de faciliter leur recyclage par des procédés pyrométallurgiques. Elle permet également de diminuer les pertes en fer et de limiter la formation des ferrites de zinc de type spinelle qui ne peuvent être valorisés par l'emploi de méthodes hydrométallurgiques.

L'étude expérimentale que nous avons menée a montré que l'éclatement des bulles à la surface de l'acier liquide donnait naissance à deux types de gouttes : des gouttes de jet et des gouttes de film. Les gouttes de jet sont trop grosses pour participer à la formation des poussières. Seules de très petites bulles (de moins d'un millimètre de diamètre) pourraient donner naissance à des gouttes de jet susceptibles d'être entraînées dans le circuit de captage mais cette hypothèse est assez improbable. La contribution de l'éclatement des bulles à la formation des poussières passe donc essentiellement par l'émission des gouttes de film.

Celle-ci dépend de la taille de la bulle mère : lorsque la taille de la bulle diminue, la surface du film est plus faible et les quantités de gouttes de film émises sont moins élevées. Pour diminuer les émissions de poussières au four électrique, il est donc nécessaire de bien maîtriser la formation des bulles de CO, en favorisant les petites bulles, voire en cherchant à générer des bulles dont la taille est inférieure à 4 mm. En effet, les essais de bullage menés à l'échelle du laboratoire montrent qu'en dessous de cette taille, il n'y a plus émission de gouttes de film. Il faut également veiller à former des bulles dont la taille est supérieure au millimètre pour éviter que la formation des gouttes de jet ne puisse avoir une incidence quelconque sur la formation des poussières.

A première vue, le sidérurgiste dispose de trois leviers d'action pour maîtriser la taille des bulles de CO :

- le contrôle de la décarburation de l'acier,
- la qualité du moussage,
- la composition du laitier.

La taille des bulles de CO au moment où elles éclatent à la surface du bain est conditionnée par leur brève histoire, faite de deux phases, germination et croissance, successives mais en compétition du point de vue cinétique. La décarburation de l'acier est un processus encore très mal connu bien qu'il conditionne, outre la formation des poussières, une grande partie des réactions qui se produisent dans les réacteurs sidérurgiques. Le contrôle de la taille des bulles par ce biais nécessiterait une meilleure connaissance des phénomènes qui se produisent lors de l'injection d'oxygène. On suppose, par exemple, que le brassage important engendré par l'injection d'oxygène au niveau de la lance de soufflage entraîne dans le laitier de nombreuses gouttelettes d'acier, ce qui favorise d'une part les réactions métal/laitier et d'autre part la formation des bulles de CO. On peut donc imaginer qu'un ensemencement de la zone d'injection par de fines particules (par ex. de silice) permettrait de favoriser la germination de nombreuses bulles sur ces inclusions. Pour un même volume de CO, on formerait davantage de bulles, mais plus petites. Les particules d'oxyde injectées rejoindraient finalement le laitier aidées en cela par les bulles remontant à la surface.

Comme nous avons déjà eu l'occasion de le préciser, le moussage du laitier est un phénomène particulièrement recherché par le sidérurgiste. Le recouvrement du bain par une mousse constituée de bulles de petite taille permet de limiter les projections de gouttes de jet et les projections de gouttes de film par des bulles isolées arrivant en surface. Par contre, l'éclatement des bulles constituant la mousse donne également naissance à des gouttes de film, qu'il faudrait quantifier précisément. Si la mousse est fine, les bulles sont petites et les projections sans doute limitées.

La composition du laitier, et plus particulièrement la présence de tensioactifs, peut également jouer un rôle dans l'émission des gouttes de film. En effet, nous avons montré que la diminution de la tension superficielle du liquide dans lequel évolue la bulle entraînait une augmentation de la quantité de gouttes de film émises. Ce phénomène est lié à la position d'équilibre de la bulle à la surface, et plus particulièrement à la surface du film qui augmente lorsque la tension superficielle du liquide diminue. En choisissant de préférence un laitier

ayant une tension superficielle relativement élevée, il est possible de limiter les projections de gouttes de film. Une étude complémentaire serait toutefois nécessaire pour vérifier qu'une tension superficielle élevée ne favorise pas la formation de grosses bulles, ce qui annulerait l'effet recherché par une telle solution.

Enfin, on peut également citer la solution proposée par Huber (2000), qui consiste à privilégier l'utilisation d'énergie électrique pour assurer la fusion, au détriment de l'énergie fossile génératrice de CO. Cette méthode radicale permettrait de réduire le nombre de bulles formées et donc la quantité globale de poussières, tout en limitant les émissions de gaz à effet de serre.

Les pistes suggérées ci-dessus concernent essentiellement la réduction des émissions par projection, qui constituent la part non valorisable des poussières. La démarche dans laquelle s'inscrit cette étude vise également à favoriser la valorisation de la part ultime par des procédés permettant notamment l'extraction du zinc contenu dans les poussières. Le développement de ces procédés et leur viabilité économique passent par la maîtrise des caractéristiques des poussières (teneur en zinc, minéralogie, granulométrie) afin d'atteindre les spécifications requises pour la production de zinc. En ce sens, le modèle d'agglomération-coalescence que nous avons développé peut être considéré comme une première étape dans la mise au point d'un outil permettant de décrire l'évolution physico-chimique des poussières et de déterminer l'ensemble des paramètres contrôlant cette évolution. Une modélisation complète nécessiterait d'y intégrer les interactions chimiques entre particules et les réactions avec le gaz porteur et de coupler le modèle avec une modélisation fine de l'écoulement. A partir d'un tel outil, il serait possible de déterminer les conditions idéales de captage des fumées (dimensionnement et régulation du dispositif, température, composition du gaz) en fonction des caractéristiques recherchées pour une valorisation optimale des poussières.

D'un point de vue plus global, certains des phénomènes que nous avons étudiés dépassent le simple cadre de la genèse des poussières au four électrique à arc. Ainsi, les processus de rupture du film coiffant une bulle à la surface de l'acier liquide, mis en évidence dans nos expériences, doivent intervenir de la même façon dans d'autres systèmes, dont le système air-eau. Pour rester dans le domaine de la sidérurgie, des phénomènes de projections par éclatement de bulles et d'agglomération de particules interviennent dans d'autres procédés que le four électrique, par exemple au convertisseur (à fonte ou AOD). Les résultats obtenus au cours de cette étude peuvent permettre de mieux comprendre la formation de poussières dans ces réacteurs. Nous en avons donné une illustration avec l'application de notre modèle d'agglomération-coalescence au dispositif de captage du convertisseur. A partir des simulations numériques, on a pu expliquer comment des mécanismes identiques et des procédés voisins pouvaient produire des poussières de granulométries très différentes.

# Bibliographie

- Afeti et Resch (1990)** Afeti G., Resch F. : « Distribution of the liquid aerosol produced from bursting bubbles in sea and distilled water », *Tellus*, vol. 42B (1990), pp 378-384.
- Aitken (1884)** Aitken J. : « On the formation of small clear spaces in dusty air », *Trans. R. Soc. Edinb.*, vol. 32 (1884), pp 239-272.
- Arion et al. (1998)** Arion A., Birat J.P., Delebarre A., Dez A., Gonthier S., Lartiges S., Ravaine D. : « Caractérisation des poussières de four électrique : bilan des connaissances actuelles et perspectives », *Rapport interne IRSID*, RI 98.32 (1998).
- Bates (1963)** Bates R.E., *J. of the Iron and Steel Institute*, vol. 201 (1963), pp 747-751.
- Batterham et al. (1981)** Batterham R., Halls J., Barton G, in *Proceedings of the 3rd international symposium on agglomeration*, (1991), p A136.
- Bergeron et al. (1992)** Bergeron V., Jimenez-Laguna A.J., Radke C.J. : « Hole formation and sheeting in the drainage of thin liquid films », *Langmuir*, vol. 8 (1992), pp 3027-3032.
- Bernache-Assolant (1993)** Bernache-Assolant D., *Chime-Physique du frittage*, (1993), ed. Hermès, Paris.
- Birat et al. (1998)** Birat J.P., Dez A., Faral M., Gonthier S., Huber J.C., Aubry B. : « Dust generation and recycling in the EAF, co-recycling of zinc and steel », *Journées Sidérurgiques Internationales ATS*, Paris (1998).
- Bird et al. (1962)** Bird R.B., Stewart W.E., Lightfoot E.N., *Transport Phenomena*, (1962), ed. Wiley, New York.
- Blanchard (1963)** Blanchard D.C. : « The electrification of the atmosphere by particles from bubbles in the sea », *Progr. Oceanogr.*, vol. 1 (1963), pp 71-202.
- Blanchard (1983)** Blanchard D.C. : « The production, distribution, and bacterial enrichment of the sea-salt aerosol », *Air-Sea exchange of gases and particles*, éd. Par P.S. Liss, W.G.N. Slinn, D. Reidel, Norwell, Mass. (1983), pp 407-454.
- Blanchard et Syzdek (1977)** Blanchard D.C., Syzdek L. : « Production of air bubbles of a specified size », *Chemical Engineering Science*, vol. 32 (1977),

pp 1109-1112.

- Blanchard et Syzdek (1988)** Blanchard D.C., Syzdek L. : « Film drop production as a function of bubble size », *Journal of Geophysical Research*, vol. 93 (1988), pp 3649-3654.
- Boulton-Stone et Blake (1993)** Boulton-Stone J.M., Blake J.R. : « Gas bubbles bursting at a free surface », *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 254 (1993), pp 437-466.
- Bouvard (2002)** Bouvard D., *Métallurgie des poudres*, (2002), ed. Hermès, Paris.
- Byers et Calvert (1969)** Byers R.L., Calvert S. : « Particle deposition from turbulent streams by means of thermal force », *I & EC Fundam.*, vol. 8 (1969), pp 646-655.
- Chernyatevich et al. (1980)** Chernyatevich A.G., Shishov B.I., Solomon G.M. : « Interaction between jet of oxygen and metal bath », *Steel in USSR*, vol. 10 (1980), pp 70-72.
- Chevrier et Cramb (2000)** Chevrier V.F., Cramb A.W. : « X-ray fluoroscopy observations of bubble formation and separation at a metal-slag interface », *Metallurgical and Materials Transactions B*, vol. 31B (2000), pp 537-539.
- Conochie et Robertson (1980)** Conochie D.S., Robertson D.C.G. : « A ternary interfacial energy diagram », *Proc. Conf. Gas Injection into Liquid Metals*, Newcastle, éd. Univ. of Newcastle, Newcastle upon Tyne (1980).
- Cruells et al. (1992)** Cruells M., Roca A., Nunez C. : « Electric arc furnace flue dusts : characterization and leaching with sulphuric acid », *Hydrometallurgy*, vol. 31 (1992), pp 213-231.
- Culick (1960)** Culick F.E.C. : « Comments on a ruptured soap films », *Journal of Applied Physics*, vol. 31 (1960), pp 1128-1129.
- Davis (1984)** Davis R. : « The rate of coagulation of a dilute polydisperse system of sedimentating spheres », *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 145 (1984), pp 179-199.
- De Nevers (1981)** De Nevers N. : « Shear-and-dissolve method for small bubble production », *Chemical Engineering Science*, vol. 36 (1980), pp. 773-774
- De Vries (1958)** De Vries A.J. : « Foam stability », *Rubber Chem. Tech.*, vol. 31 (1958), pp 1142-1159.
- Delhaes et al. (1993)** Delhaes C., Hauck A., Neuschütz D. : « Mechanisms of dust generation in a stainless steelmaking converter », *Steel Research*, vol. 64 (1993), pp 22-27.
- Dey et al. (1997)** Dey D., Boulton-Stone J.M., Emery A.N., Blake J.R. :

- « Experimental comparisons with a numerical model of surfactant effects on the burst of a single bubble », *Chemical Engineering Science*, vol. 52 (1997), pp 2769-2783.
- Dombrowski et Fraser (1954)** Dombrowski N., Fraser R.P. : « A photographic investigation into the disintegration of liquid sheets », *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, vol. 247 (1954), p 101.
- Doubliez (1991)** Doubliez L. : « The drainage and rupture of a non-foaming liquid film formed upon bubble impact with a free surface », *Journal of Multiphase Flow*, vol. 17 (1991), pp 783-803.
- Dupré (1867)** Dupré A., *Ann. Chim. Phys.*, vol. 11 (1867), p. 194.
- Ellis et Glover (1971)** Ellis A., Glover J. : « Mechanism of fume formation in oxygen steelmaking », *J. of the Iron and Steel Institute*, Aug. (1971), pp 593-599.
- Feiterna et al. (2000)** Feiterna A., Huin D., Oeters F., Riboud P.V., Roth J.L. : « Iron drop ejection into slags by bursting gas bubbles », *Steel Research*, vol. 71 (2000), pp 61-69.
- Frankel et Mysels (1969)** Frankel S., Mysels J.K. : « The bursting of soap films. II: Theoretical considerations », *Journal of Physical Chemistry*, vol. 73 (1969), pp 3028-3038.
- Frenkel (1945)** Frenkel J. : « Viscous flow of crystalline bodies under the action of surface tension », *Journal of Physics*, vol. 9 (1945), pp 385-391.
- Friedlander (1977)** Friedlander S., *Smoke, Dust and Haze: Fundamentals of aerosol behaviour*, (1977), ed. Wiley, New York
- Friedlander et Wu (1994)** Friedlander S., Wu M.K. : « Linear rate law for the decay of the excess surface area of a coalescing solid particle », *Physical Review B*, vol. 49 (1994), pp 3622-3624.
- Fuchs (1964)** Fuchs N., *The mechanics of aerosols*, Pergamon Press, Oxford
- German (1996)** German R.M., *Sintering theory and practice*, (1996), ed. Wiley-Interscience, New York
- Guézennec (2001)** Guézennec A.G. : « Etude expérimentale de la formation des poussières par éclatement de bulles de gaz », *DEA INPL*, Nancy (2001).
- Guthrie et al. (1978)** Guthrie R.I.L., Irons G.A. : « Bubbles formation at nozzles in pig iron », *Met. Trans. B*, vol. 9B (1978), pp. 101-110
- Haelein (1931)** Haelein A., *Forsch. IngWes.*, vol 2 (1931), p 139, cité par Newitt et al. (1954)
- Hagni (1995)** Hagni A.M. : « Reflected light microscopy, electron microscopy, electron spectroscopy, and X-ray diffraction mineralogical characterization of EAF dusts », *University of*

Missouri-Rolla, PhD (1995).

- Hagni et al. (1993)** Hagni A.M., Hagni R.D. : « Significance of mineralogy of EAF dust in pyrometallurgical treatment to render the dust non-hazardous », *Extraction and Processing for the treatment and minimization of Wastes*, éd. J. Hager, W. Imrie, J. Pusatori, V. Ramachandran, The Minerals, Metals & Materials Society (1993), pp 1137-1148.
- Han et Holappa (2003)** Han Z., Holappa L. : « Bubble bursting phenomenon in gas/metal/slag systems », *Metallurgical and Materials Transactions B*, vol. 34B (2003), pp 525-532.
- He et Standish (1990)** He Q.L., Standish N. : « A model study of droplet generation in the BOF steelmaking », *ISIJ Int.*, vol. 30 (1990), pp 305-309.
- Hébrard (2004)** Hébrard S. : « Etude et modélisation des phénomènes de transport de matière couplés à la morphologie de la poudre lors de la pyrohydrolyse réductrice du difluorure d'uranyle », *Thèse INPL*, Nancy (2004).
- Herman et Mesler (1987)** Herman J., Mesler R. : « Bubble entrainment from bursting bubbles », *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 117 (1987), pp 565-569.
- Hidy et Brock (1970)** Hidy G.M., Brock J.R., *The dynamics of aerocolloidal systems*, (1970), ed. Pergamon, Elmsford, New York.
- Hino et al. (1994)** Hino M., Wang S., Nagasaka T., Ban-Ya S. : « Evaporation rate of zinc in liquid iron », *ISIJ*, vol. 34 (1994), pp 491-497.
- Hiram et Nir (1983)** Hiram Y., Nir A., *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 95 (1983), pp 462.
- Hounslow et al. (1988)** Hounslow M., Ryall R., Marshall V. : « A discretized population balance for nucleation, growth and aggregation », *A.I.Ch.E. Journal*, vol. 34 (1988), pp 1821-1832.
- Huber (2000)** Huber J.C. : « La formation des poussières dans un four électrique d'aciérie », *Thèse INPL*, Nancy (2000).
- Huber (2003)** Huber J.C. , communication privée (2003).
- Huber (2004)** Huber J.C. , communication privée (2004).
- Ivanov et al. (1970)** Ivanov I.B., Radoev B., Manev E., Scheludko A. : « Theory of the critical thickness of rupture of thin liquid films », *Discussions Faraday Soc.*, vol. 66 (1970), pp 1262-1273.
- Johannessen et al. (2000)** Johannessen T., Pratsinis S.E., Livbjerg H. : « The effect of particle coalescence on the surface area of a coagulating aerosol », *Chemical Engineering Science*, vol. 55 (2000), pp 177-191.
- Jong-Leng et Gray (1996)** Jong-Leng L., Gray N.B. : « Experimental study of splash

- generation in a flash smelting furnace », *Met. Trans. B*, vol. 27B (1996), pp 633-646.
- Kelebek et al. (2004)** Kelebek S., Yoruk S., Davis B. : « Characterization of basic oxygen furnace dust and zinc removal by acid leaching », *Minerals Engineering*, vol. 17 (2004), pp 285-291.
- Koch et Friedlander (1990)** Koch W., Friedlander S. : « Computational fluid-particle dynamics for the flame synthesis of alumina particles », *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 140 (1990), pp 419-427.
- Kodas et Hampden-Smith (1999)** Kodas T., Hampden-Smith M., *Aerosol Processing of Materials*, (1999), ed. Wiley, New York
- Koria et Lange (1978)** Koria S.C., Lange K.W. : « Production of drops in the initial stages of basic oxygen steelmaking », *Proc. of the third Int. Iron and Steel Congress*, April 1978, Chicago III, pp 373-385.
- Koria et Lange (1984)** Koria S.C., Lange K.W. : « A new approach to investigate the drop size distribution in basic oxygen steelmaking », *Met. Trans. B*, vol 15B (1984), pp 109-116.
- Koria et Lange (1986)** Koria S.C., Lange K.W. : « Estimation of drop sizes in impinging jet steelmaking processes », *Ironmaking and Steelmaking*, vol. 13 (1986), pp 236-240.
- Kowalski et Thomas (1994)** Kowalski A.J., Thomas N.H. : « Bursting of bubbles stabilised by surfactants for control of cell damage », *Bubble Dynamics and Interface Phenomena*, ed. by J.R. Blake et al. (1994), Kluwer Academic Publishers, Netherlands, pp 457-466.
- Kralchevsky et al. (1990)** Kralchevski P.A., Nikolov A.D., Wasan D.T., Ivanov I.B. : « Formation and expansion of dark spots in stratifying foam films », *Langmuir*, vol. 6 (1990), pp 1180-1189.
- Krasheninnikov et al. (1979)** Krasheninnikov M.G., Filipov S.I., Borodin A.N., *Steel USSR*, vol. 9 (1979), pp 22-24.
- Kruis et al. (1993)** Kruis F.E., Kusters K.A., Pratsinis S.E. : « A simple model for the evolution of the characteristics of aggregate particles undergoing coagulation and sintering », *Aerosol Science and Technology*, vol. 19 (1993), pp 514-526.
- Kumar et al. (2002)** Kumar K., Nikolov A.D., Wasan D.T. : « Effect of film curvature on drainage of thin liquid films », *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 256 (2002), pp 194-200.
- Kumar et Ramkrishna (1996)** Kumar S., Ramkrishna D. : « On the solution of population balance equations by discretization-I. A fixed pivot technique », *Chemical Engineering Science*, vol. 51 (1996), pp 1311-1332.

- Langevin et Sonin (1994)** Langevin D., Sonin A.A. : « Thinning of soap films », *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 51 (1994), pp 1-27.
- Lee et al. (2000)** Lee D., Bonner J., Garton L., Ernest A., et Autenrieth R. : « Modeling coagulation kinetics incorporating fractal theories : a fractal rectilinear approach », *Water Ressources*, vol. 34 (2000), pp 1987-2000.
- Lehtinen et al. (1996)** Lehtinen K.E., Windeler R.S., Friedlander S. : « Prediction of nanoparticle size and the onset of dendrite formation using the method of characteristic time », *Journal of Aerosol Science*, vol. 27 (1996), pp 883-896.
- Levich (1962)** Levich V.G., *Physicochemical Hydrodynamics*, (1962), ed. Wiley, New York
- Li et al. (1995)** Li L., Tu S., Janke D. : « Kinetics of Zn and Pb evaporation from liquid iron », *Steel Research*, vol. 66 (1995), pp 188-193.
- Li et Tsai (1993)** Li C.L., Tsai M.L. : « Mechanism of spinel ferrite dust formation in EAF steelmaking », *ISIJ*, vol. 33 (1993), pp 284-290.
- Lopez et al. (1993)** Lopez F.A., Gonzalez P., Sainz E., Balcazar N. : « Electric arc furnace flue dust: characterization and toxicity with *Photobacterium phosphoreum* », *International Journal of Environment and Pollution*, vol. 3 (1993), pp 269-283.
- Loske et Lange (1985)** Loske W., Lange K.W. : « Modeluntersuchungen zum Zusammenhang zwischen Aufblasbedingungen und Spritzvolumen beim Sauerstoffblasverfahren », *Steel Research*, vol. 56 (1985), pp 507-512.
- MacEntee et Mysels (1969)** MacEntee W.R., Mysels J.K. : « The bursting of soap films. II: An experimental study », *Journal of Physical Chemistry*, vol. 73 (1969), pp 3018-3028.
- Machlin (1960)** Machlin E.S., *Trans AIME*, vol. 218 (1960), pp 314-326.
- MacIntyre (1968)** MacIntyre F. : « Bubbles: A boundary-layer 'microtome' for micron-thick samples of a liquid surface », *Journal of Physical Chemistry*, vol. 72 (1968), pp 589.
- MacIntyre (1972)** MacIntyre F. : « Flow patterns in breaking bubbles », *Journal of Geophysical Research*, vol. 77 (1972), pp 5211-5228.
- Matsoukas et Friedlander (1991)** Matsoukas T., Friedlander S. : « Dynamics of aerosols agglomerate formation », *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 146 (1991), pp 495-506.
- Meshalkin et al. (1985)** Meshalkin A.P., Prosvirin K.S., Okhotskii V.B., Kolganov G.S. : « Formation of splashes of liquid phases during

- submerged injection of basic oxygen furnace bath », *Steel in the USSR*, vol. 15 (1985), pp 369-371.
- Mills et Keene (1987)** Mills K.C., Keene B.J. : « Physical properties of BOF slags », *Int. Mat. Rev.*, vol. 32 (1987), pp 1-20.
- Morris et al. (1966)** Morris J.P., Riott J.P., Illig E.G. : « A new look at the cause of fuming », *J. of Metals*, July (1966), pp 803-810.
- Mysels et al. (1971)** Mysels J.K., Stikeleather J.A. : « The bursting of soap films. III: Spontaneous and induced bursting », *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 35 (1971), pp 159-162.
- Nakashima et Mori (1992)** Nakashima K., Mori K. : « Interfacial properties of liquid iron alloys and liquid slags relating to iron- and steel-making processes », *ISIJ*, vol. 32 (1992), pp 11-18.
- Nedar (1996)** Nedar L. : « Dust formation in a BOF converter », *Steel Research*, vol. 67 (1996), pp 320-327.
- Newitt et al. (1954)** Newitt D.M., Dombrowski N., Knelman F.H. : « Liquid entrainment: 1. The mechanism of drop formation from gas or vapour bubbles », *Trans. Instn Chem. Engrs*, vol. 32 (1954), pp 244-261.
- Nishio et al. (1974)** Nishio G., Kitani S., Takahashi K. : « Thermophoretic deposition of aerosol particles in heat-exchanger pipe », *Ind. Eng. Chem., Process Des. Develop.*, vol. 13 (1974), pp 408-415.
- Okhotskii et al (1972)** Okhotskii V.B., Chernyatevich A.G., Prosvirin K.S. : « Studying the interaction between jets of oxygen and metal baths », *Steel in the USSR*, vol. 2 (1972), pp 443-444.
- Okhotskii et al (1977)** Okhotskii V.B., Butko A.V., Makhnyuk D.G., Evstaf'ev E.I., Fomenko V.P. : « Metallized Oxygen lances », *Steel in the USSR*, vol. 2 (1977), pp 262-264.
- Ozturk et Fruehan (1996)** Ozturk B., Fruehan R.J. : « Vaporisation of zinc from steel scrap », *ISIJ*, vol. 36 (1996), pp S239-S242.
- Pandit and Davidson (1990)** Pandit A.B., Davidson J.F. : « Hydrodynamics of the rupture of thin liquid films », *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 212 (1990), pp 11-24.
- Peaslee (1996)** Peaslee K.D. : « Physical modelling of slag splashing in the BOF », *Iron and Steel Engineer*, vol. 73 (1996), pp 33-37.
- Peaslee et al. (1993)** Peaslee K.D., Panda D.K., Robertson G.C. : « Physical modelling of metal/slag/gas interactions and reactions in steelmaking », *Steelmaking Conference Proceedings* (1993), pp 637-644.
- Peaslee et Robertson (1994)** Peaslee K.D., Robertson G.C. : « Model studies of splash, waves and recirculating flows within steelmaking

- furnaces », *Steelmaking Conference Proceedings* (1994), pp 713-722.
- Pluschkell et Janke (1992)** Pluschkell W., Janke D. : « Thermodynamics of Zn reaction in the BOF steelmaking process », *Steelmaking Conference* (1992), pp 717-722.
- Polyakov et Makarova (1974)** Polyakov A.Y., Makarova N.N., *Steel USSR*, vol. 4 (1974), pp 364-367.
- Porter et al. (1982)** Porter J.R., Goldstein J.L., Kim Y.W. : « Characterization of directly sampled EAF dust », *American Institute of Physics* (1982), pp 377-393.
- Ramkrishna (2000)** Ramkrishna D., *Population balances – Theory and applications to particulate systems in engineering*, (2000), ed. Academic Press, San Diego
- Randolph et Larson (1971)** Randolph A., Larson M., *The theory of particulate processes*, (1971), ed. Academic Press, New York
- Ranz (1959)** Ranz W.E. : « Some experiments on the dynamic of liquid films », *Journal of Applied Physics*, vol. 30 (1959), pp 1950-1955.
- Ravaine (1997)** Ravaine D., Communication privée (1997).
- Rayleigh (1891)** Rayleigh E.D. : « Some applications of photography », *Nature*, vol. 44 (1891), pp 249-254.
- Resch et Afeti (1991)** Resch F., Afeti G. : « Film drop distribution from bubbles bursting in seawater », *Journal of Geophysical Research*, vol. 96 (1991), pp 10681-10688.
- Resch et Afeti (1992)** Resch F., Afeti G. : « Submicron film drop production by bubbles in seawater », *Journal of Geophysical Research*, vol. 97 (1992), pp 3679-3683.
- Resch et al. (1986)** Resch F., Darrozes J.S., Afeti G. : « Marine liquid aerosol production from bursting of air bubbles », *Journal of Geophysical Research*, vol. 91 (1986), pp 1019-1029.
- Romay et al. (1998)** Romay F.J., Takagaki S.S., Pui D., Liu B. : « Thermophoretic deposition of aerosol particles in turbulent pipe flow », *Journal of Aerosol Science*, vol. 29 (1998), pp 943-959.
- Sastry et Lofftus (1990)** Sastry K., Lofftus K., in *Iche-5<sup>th</sup> international symposium on agglomeration*, (1990), The Institution of Chemical Engineers, pp 623-631
- Schoop et Oehler (1999)** Schoop J., Oehler C. : « Influence of lance-tip design on BOF steelmaking », *Asia Steel*, (1999), pp 92-98.
- Scott (1968)** Scott W. : « Analytic studies of cloud droplet coalescence », *Journal of Atmospheric Science*, vol. 25 (1968), p 54.

- Seinfeld (1986)** Seinfeld J.H., *Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution*, (1986), ed. Wiley, New York
- Senée et al. (1999)** Senée J., Robillard B., Vignes-Adler M. : « Films and foams of Champagne wines », *Food Hydrocolloids*, vol. 13 (1999), pp 15-26.
- Sheludko (1967)** Sheludko A. : « Thin liquid films », *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 1 (1967), pp 391-464.
- Smoluchowski (1917)** Smoluchowski M. : « Versuch einer mathematischen Theorie der Koagulationskinetic Kolloider Lösungen », *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, vol. 92 (1917), pp 129-166.
- Spiel (1994 a)** Spiel E.D. : « The sizes of the jet drops produced by air bubbles bursting on sea- and fresh-water surfaces », *Tellus*, vol. 46B (1994), pp 325-338.
- Spiel (1994 b)** Spiel E.D. : « The number and size of jet drops produced by air bubbles bursting on a freshwater surface », *Journal of Geophysical Research*, vol. 99 (1994), pp 10289-10296.
- Spiel (1997 a)** Spiel E.D. : « More on the birth of jet drops from bursting bubbles on seawater surfaces », *Journal of Geophysical Research*, vol. 102 (1997), pp 5815-5821.
- Spiel (1997 b)** Spiel E.D. : « A hypothesis concerning the peak in film drop production as a function of bubble size », *Journal of Geophysical Research*, vol. 102 (1997), pp 1153-1161.
- Spiel (1998)** Spiel E.D. : « Drop production by bursting of air bubbles on the sea surface (II). Theoretical study on the shape of floating bubbles », *Journal of Geophysical Research*, vol. 103 (1998), pp 24907-24918.
- Standish et He (1989)** Standish N., He Q.L. : « Drop generation due to an impinging jet and the effect of bottom blowing in the steelmaking vessel », *ISIJ Int.*, vol. 29 (1989), pp 455-461.
- Takashima (1995)** Takashima S. : « Observation of zinc in BOF dusts and its formation mechanism », *Camp-ISIJ*, vol. 8 (1995), p 1100.
- Talbot et al. (1980)** Talbot L., Cheng R.K., Schefer R.W., Willis D.R. : « Thermophoresis of particles in a heated boundary layer », *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 101 (1980), pp 737-758.
- Tanaka et Okane (1987)** Tanaka T., Okane K. : « Interaction between gas and liquid by means of jet of top blow », *Trans ISIJ*, vol. 27 (1987), B7.
- Thornton et al. (1996)** Thornton G., Welbourn B.C. : « Reduction in BOF fume losses by the application of X-ray fluorescence measurements », *Iron&Steelmaker*, Sept. (1996), pp 67-70.
- Toba (1959)** Toba Y. : « On the births of film drops from bubbles bursting

- on seawater surfaces », *Journal of the Oceanographical Society of Japan*, vol. 15 (1959), pp 121-130.
- Tsai et Li (1989)** Tsai M.S., Li C.L. : « Recovery of Mn-Zn ferrite powder from EAF steelmaking dusts », *MMIJ/IMM Joint Symposium*, Kyoto, éd. Shigaku-Kaikan (1989), pp 373-387.
- Tsantilis et al. (2002)** Tsantilis S., Kammler H.K., Pratsinis S.E. : « Population balance modeling of flame synthesis of titania nanoparticles », *Chemical Engineering Science*, vol. 57 (2002), pp 2139-2156.
- Tyndall (1870)** Tyndall J. : « On dust and disease », *Proc. R. Inst.*, vol. 6 (1870), pp 1-14.
- Unger et al. (1996)** Unger H., Starflinger J., Brockmeier U., Koch M.K., Schütz W. : « Modelling of fission product release by re-entrainment due to bursting bubbles », *Kerntechnik*, vol. 61 (1996), pp 16-22.
- Urbain (1987)** Urbain G. : « Viscosity estimation of slags », *Steel Research*, vol. 58 (1987), pp 111-116.
- Vermury et al. (1994)** Vermury S., Kusters K., Pratsinis S.E., in *Proceedings of the International Particle Technology Forum*, vol. 2 (1994), p 350
- Vrij (1966)** Vrij A. : « Possible Mechanism for the spontaneous rupture of thin, free liquid films », *Discussions Faraday Soc.*, vol. 42 (1966), pp 23-33.
- Ward (1963)** Ward R.G. : « Evaporative losses during vacuum induction melting of steel », *J. of the Iron & Steel Institute*, Jan. (1963), pp 11-15.
- Weber (1931)** Weber C., *Z. Angen. Math. Mech.*, vol 11 (1931), p 136, cité par Newitt et al. (1954)
- Wu (1989)** Wu J. : « Contributions of film and jet drops to marine aerosols produced at the sea surfaces », *Tellus*, vol. 41B (1989), pp 469-473.
- Wu (1990)** Wu J. : « Comment on 'Film drop production as a function of bubble size' by D.C. Blanchard and L.D. Syzdek », *J. of Geophysical Research*, vol. 95 (1990), pp 7389-7391.
- Wu (1994)** Wu J. : « Film drops produced by air bubbles bursting at the surface of seawater », *J. of Geophysical Research*, vol. 99 (1994), pp 16403-16407.
- Xiong et Pratsinis (1991)** Xiong Y, Pratsinis S.E. : « Gas phase production of particles in reactive turbulent flows », *Journal of Aerosol Science*, vol. 22 (1991), pp 637-655.
- Yazawa et Azakami (1969)** Yazawa A., Azakami T. : « Thermodynamic consideration of

zinc blast furnace smelting », *Canadian Metallurgical Quaterly*,  
vol. 8 (1969), pp 313-318.



# Annexe A :

## Formation de bulles à partir d'un capillaire plongé dans un liquide

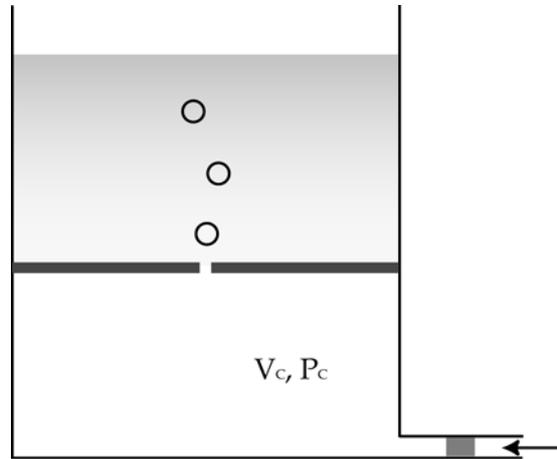
Le dispositif de bullage doit permettre de générer dans l'acier liquide des bulles gazeuses individualisées, de diamètre contrôlé mais que l'on peut faire varier d'un essai à l'autre, avec une fréquence régulière. Ces impératifs nous ont conduit à adopter un système de bullage par capillaire. D'autres méthodes, comme le bullage à travers un bouchon poreux ou par mise en œuvre d'une réaction au sein du bain (comme la décarburation), ont été écartées car mal adaptées à la production de bulles régulières qui puissent être étudiées individuellement. Une étude bibliographique préalable ainsi que des essais expérimentaux sur maquette à eau ont été menés afin de déterminer les paramètres influençant la taille des bulles formées à partir d'un orifice rigide immergé dans un liquide au repos. Par analogie avec les régimes d'écoulement définis dans les colonnes à bulles, ce phénomène est caractérisé en termes de régimes de bullage. Ceux-ci sont influencés par trois types de facteurs :

- le système d'injection du gaz,
- le débit de gaz injecté,
- les effets de tension de surface.

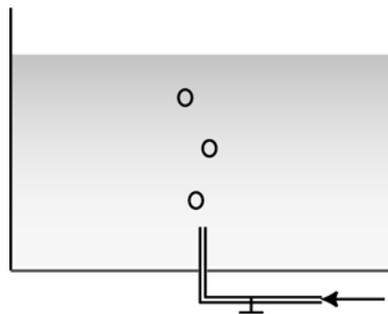
Le système d'injection du gaz conditionne à la fois la taille des bulles et la manière dont le bullage est contrôlé. Il est caractérisé d'une part par la taille de l'orifice et d'autre part par le volume de chambre  $V_C$  sous l'orifice (volume de gaz situé entre la vanne de contrôle du débit et l'orifice immergé). En fonction du volume de chambre, on définit différentes conditions de contrôle du bullage :

- le bullage à pression de gaz imposée constante (ou bullage à pression contrôlée) : dans ce cas, le volume de chambre est très grand par rapport au volume de la bulle émergente ; généralement, le gaz est injecté par un orifice circulaire percé au milieu d'une plaque d'épaisseur négligeable placée au-dessus d'un réservoir de gaz ( $V_C$ ), la figure 1 donne un exemple d'un tel dispositif ;
- le bullage à débit de gaz imposé constant : dans ce cas le volume de chambre est petit par rapport au volume de la bulle émergente et le gaz est injecté par un tube capillaire (voir figure 2) ;
- le bullage en conditions intermédiaires : pour les valeurs intermédiaires de  $V_C$ , le débit à travers l'orifice et la pression de gaz dans la chambre sont variables : la pression augmente linéairement pendant la phase d'expansion de la bulle, puis la pression du gaz diminue brutalement à l'instant où celle-ci se détache.

En conditions intermédiaires ou à pression contrôlée, le volume de gaz  $V_C$  a une grande influence sur la taille des bulles formées. A débit de gaz imposé constant, seuls le débit et la taille de l'orifice conditionnent la taille des bulles.



**Figure A.1 :** Exemple de dispositif de bullage à pression de gaz imposée constante



**Figure A.2 :** Exemple de dispositif de bullage à débit de gaz imposé constant

D'autres paramètres liés au système d'injection, tels que la forme de l'orifice (circulaire, fente...) ou son orientation peuvent également jouer un rôle dans la formation des bulles. Cependant, nous ne détaillerons pas ces aspects car pour des raisons techniques la fusion au four VIM autorise uniquement l'utilisation de capillaires cylindriques orientés verticalement dans le liquide. De fait, ces contraintes excluent également la mise en place d'un dispositif de bullage à pression contrôlée.

Outre les conditions de contrôle décrites précédemment, le débit de gaz injecté représente également un paramètre clé qui, selon sa valeur, définit trois régimes de bullage :

- quasi-statique : le débit de gaz est extrêmement faible et la fréquence de bullage est inférieure à 100 bulles par minute ; le volume des bulles est indépendant du débit de gaz et peut être calculé à partir d'un bilan des forces de tension de surface et de la poussée d'Archimède [Blanchard et al. (1977), De Nevers (1981)] appelé classiquement loi de Tate :

$$\frac{1}{6} \pi d_B^3 (\rho_l - \rho_{\text{gaz}}) = \pi d \sigma_{l/g} \quad (\text{A1})$$

avec :  $d$  diamètre de l'orifice ;

- dynamique : le débit est modéré et la taille des bulles dépend à la fois du débit, de la taille de l'orifice et du volume de chambre ;
- turbulent : ce régime apparaît à un débit de gaz très élevé, généralement supérieur à  $200 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$  ; les bulles coalescent puis éclatent en petites bulles de tailles différentes.

La littérature sur la formation des bulles fait un large usage des nombres adimensionnels. Deux d'entre eux sont fréquemment utilisés pour caractériser les régimes de bullage présentés précédemment :

- la capacitance notée  $N_C$ , définie de la façon suivante :

$$N_C = \frac{4(\rho_l - \rho_{\text{gaz}}) g V_C}{\pi d^2 P_S} \quad (\text{A2})$$

avec :  $P_S = P_0 + \rho_l g h$

$P_0$  pression au-dessus du bain

$h$  distance entre le capillaire et la surface du bain ;

- et le nombre de débit de gaz noté  $N_w$ , défini par :

$$N_w = Bo \cdot Fr^{0,5} \quad (\text{A3})$$

$$Bo = \frac{\rho_l \cdot d^2 \cdot g}{\sigma_l} = Eö \quad (\text{A4})$$

$$Fr = \frac{U^2}{d \cdot g} \quad (\text{A5})$$

avec :  $U$  vitesse du gaz à l'orifice.

La capacitance caractérise les conditions de contrôle du bullage. De nombreuses études ont été menées afin de déterminer les valeurs critiques de  $N_C$ , traduisant le passage d'un régime à l'autre. Les résultats obtenus sont très variables, certainement en raison du fait que le volume de chambre n'est pas le seul paramètre qui joue sur ces transitions, le débit de gaz et le diamètre de l'orifice interviennent aussi. On peut cependant citer les valeurs obtenues par Tadaki et Maeda (1963) et vérifiées expérimentalement par Guthrie et al. (1978) dans le cas d'un capillaire immergé dans le fer liquide :

- $N_C < 1$  : conditions à débit de gaz imposé constant,

- $1 < N_C < 9$  : conditions intermédiaires,
- $N_C > 9$  : conditions à pression de gaz imposée constante.

Le nombre  $N_W$  traduit l'influence du débit et caractérise le régime de bullage associé :

- $N_W$  très faible : la taille des bulles est uniforme (bullage quasi-statique),
- $N_W$  intermédiaire : le volume des bulles croît avec  $N_W$  (bullage dynamique),
- $N_W$  grand : le phénomène de coalescence des bulles apparaît, engendrant des distributions de taille de bulles (bullage turbulent).

Le lien entre les différents régimes de bullage et la taille des bulles est complexe en raison de l'interdépendance des paramètres. En théorie, lorsque  $N_W$  est très faible (bullage quasi-statique), le volume de la bulle est défini de la façon suivante :

- conditions à débit de gaz imposé constant : la taille de la bulle dépend uniquement des caractéristiques du liquide et de la taille de l'orifice, elle est donnée par la loi de Tate :

$$d_B = \left( \frac{6d\sigma_{1/g}}{(\rho_1 - \rho_{\text{gaz}})g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{A6})$$

- conditions intermédiaires ou à pression contrôlée : le volume de chambre devient déterminant :

$$d_B = \left( \frac{6N_C d\sigma_{1/g}}{(\rho_1 - \rho_{\text{gaz}})g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{A7})$$

Ces relations sont valables uniquement pour des dispositifs de bullage à faible angle de mouillage. Lorsque le système n'est pas mouillant, il faut modifier les expressions précédentes en conséquence. Ainsi, lorsque le gaz est injecté à partir d'un capillaire, Guthrie et al. (1978) proposent d'exprimer la capacité de la façon suivante :

$$N_C = \frac{4(\rho_1 - \rho_{\text{gaz}}) \cdot g \cdot \sin \theta \cdot V_C}{\pi \cdot d_i \cdot d_o \cdot P_S} \quad (\text{A8})$$

avec :  $\theta$  l'angle de mouillage  
 $d_i$  le diamètre intérieur du capillaire  
 $d_o$  le diamètre extérieur du capillaire

A débit de gaz imposé constant, la taille de la bulle devient :

$$d_B = \left( \frac{6d_o \sigma_{1/g}}{(\rho_1 - \rho_{\text{gaz}})g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{A9})$$

En conditions intermédiaires, on retrouve une expression similaire mais qui tient compte de la nouvelle valeur de la capacitance :

$$d_B = \left( \frac{6N_c d_o \sigma_{1/g}}{(\rho_l - \rho_g) g} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (A10)$$

Dans ces conditions, la taille théorique des bulles est supérieure à celle obtenue à partir d'un dispositif de bullage mouillant similaire.

En régime dynamique, les relations proposées dans la littérature pour calculer la taille des bulles sont beaucoup plus complexes et souvent difficiles à exploiter en raison de l'absence de données sur les conditions dans lesquelles elles ont été obtenues.

En parallèle à l'étude bibliographique, une campagne d'essais expérimentaux sur maquette à eau nous a permis de dégager quelques grandes tendances [Guézennec (2001)]. Le dispositif d'injection utilisé était constitué d'un capillaire en alumine alimenté en argon par un tube flexible de longueur variable et une vanne pointeau. Les essais ont été réalisés en conditions intermédiaires ou à débit de gaz imposé constant et en régime dynamique. Pour un même capillaire et un même volume de chambre, la taille des bulles augmente avec le débit de gaz. De même, lorsque le débit est maintenu constant, la taille des bulles augmente, lorsque le volume de chambre augmente. Enfin, pour une même capacitance et un même débit, la taille des bulles augmente lorsque le diamètre du capillaire augmente. En revanche, il ne nous a pas été possible de tester l'influence des effets de tension de surface.



# Annexe B : Séquences d'éclatement de bulles à la surface de l'acier liquide

## B.1. FORMATION DES GOUTTES DE JET

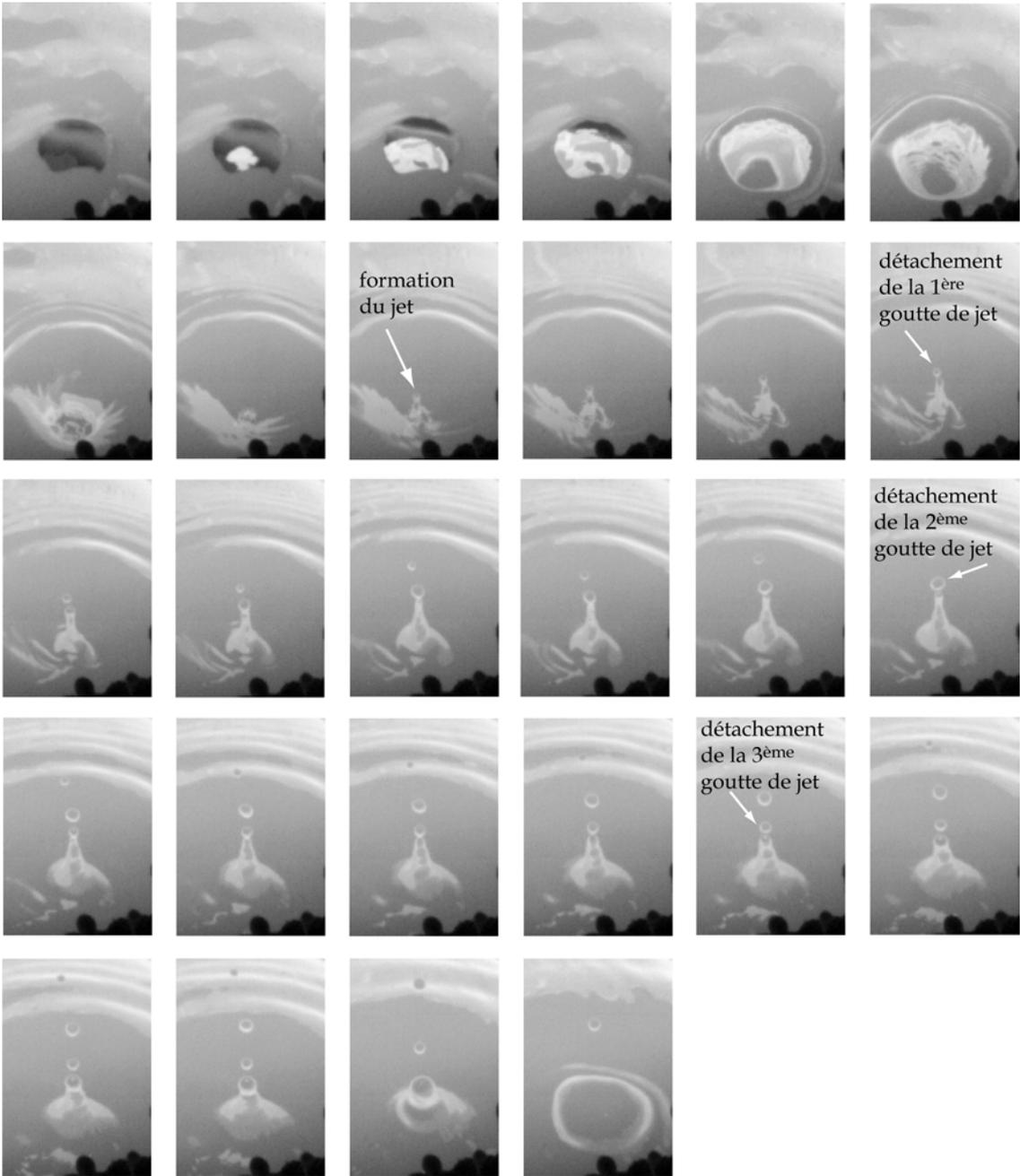
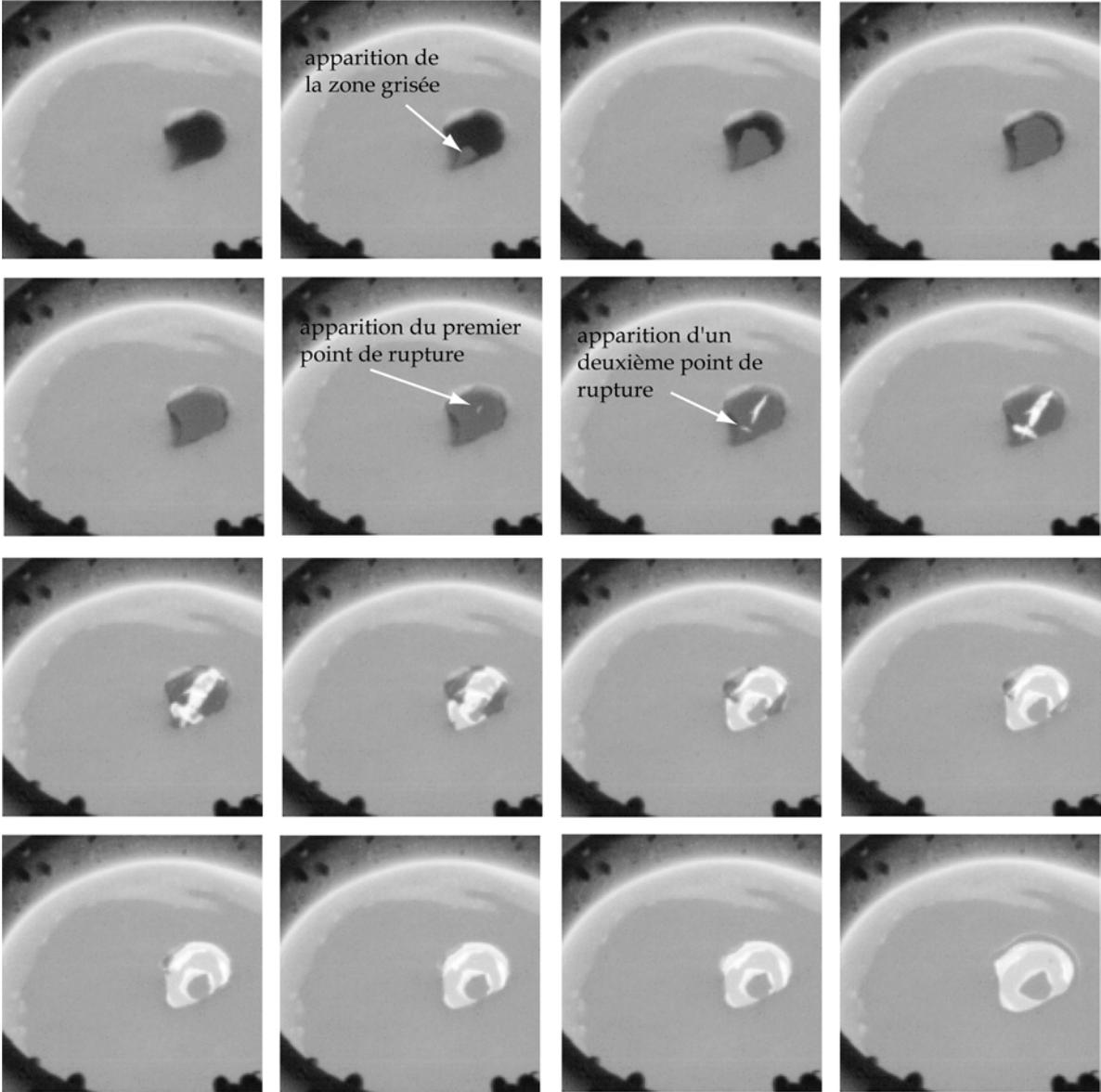


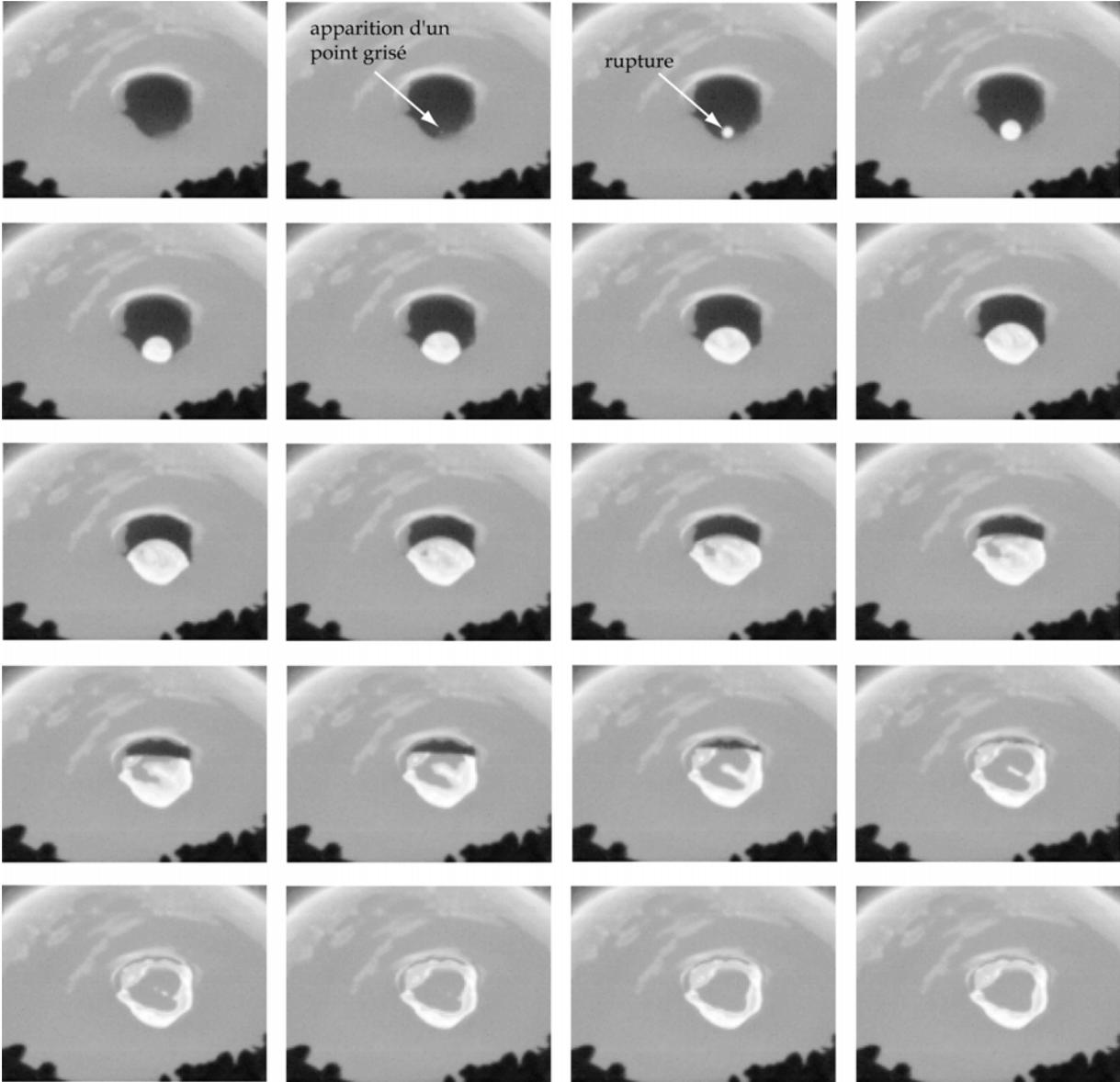
Figure B.1 : Eclatement d'une bulle à la surface de l'acier liquide et détachement de 3 gouttes de jet (caméra Phantom, vitesse d'acquisition : 13000 images/s)

**B.2. RUPTURE DU FILM EN PLUSIEURS POINTS**



**Figure B.2 :** Rupture du film en plusieurs points - les images sont consécutives (caméra Phantom, vitesse d'acquisition : 33000 images/s)

**B.3. RUPTURE DU FILM EN UN SEUL POINT**



**Figure B.3 :** Rupture du film en un seul point - les images sont consécutives (caméra Phantom, vitesse d'acquisition : 41600 images/s)



# Annexe C :

## Modélisation de l'évolution morphologique des poussières

### C.1. ETABLISSEMENT DU BILAN DE POPULATION

L'établissement du bilan de population nécessite l'introduction de quelques concepts permettant de décrire les particules contenues dans un aérosol : vecteur d'état des particules et de la phase continue, densité numérale de particules, vitesse d'évolution du vecteur d'état. A partir de ces concepts, il est possible d'adapter l'équation de Reynolds au cas des aérosols et ainsi d'obtenir l'équation de bilan de population qui décrit le transport des particules dans la phase continue.

#### *Vecteur d'état*

Les aérosols sont constitués de deux phases distinctes : les particules qui constituent la phase dispersée et le gaz porteur que nous appellerons la phase continue. Chaque particule subit des transformations liées à la fois à la présence d'autres particules et aux caractéristiques de la phase continue dans laquelle elle évolue. Ainsi dans notre cas, les particules transportées au sein du fluide gazeux, dans les conduites de captage, peuvent entrer en collision et s'agglomérer sous l'influence de l'agitation brownienne et/ou de la turbulence. Les agglomérats formés subissent également des phénomènes de frittage, par diffusion à l'état solide, voire de coalescence par déformation visqueuse. Ils peuvent se déposer sur les parois sous l'effet de la thermophorèse. Ces différents phénomènes dépendent eux-mêmes d'un certain nombre de facteurs tels que la température locale, une taille critique de particules, la géométrie d'une conduite... Si l'on veut caractériser l'état d'une particule il est donc nécessaire de prendre en compte non seulement les variables intrinsèques de la particule mais également les facteurs qui influencent son évolution. Pour cela, on a recours aux concepts de vecteur d'état de la particule et de la phase continue [cf. par exemple Ramkrishna (2000)].

Le vecteur d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  d'une particule se compose de coordonnées externes  $\mathbf{r} \equiv (r_1, r_2, r_3)$  qui définissent le vecteur position de la particule, et de coordonnées internes  $\mathbf{x} \equiv (x_1, x_2, \dots, x_m)$  qui représentent  $m$  propriétés associées à la particule (volume, surface, composition...). On peut alors définir le domaine des coordonnées internes ou espace des

propriétés que l'on appelle  $\Omega_x$ , et le domaine des coordonnées externes,  $\Omega_r$ , qui correspond à l'ensemble des points de l'espace physique où sont présentes les particules. On peut considérer que la population de particules est distribuée dans l'espace d'état des particules, qui inclut à la fois l'espace physique et l'espace des propriétés.

Les variables qui caractérisent la phase continue et qui affectent le comportement de chaque particule constituent un champ de vecteurs à  $p$  dimensions, à partir duquel on peut définir un vecteur d'état de la phase continue  $\mathbf{Y}(\mathbf{r}, t) \equiv [Y_1(\mathbf{r}, t), Y_2(\mathbf{r}, t), \dots, Y_p(\mathbf{r}, t)]$ , fonction des coordonnées externes  $\mathbf{r}$  et du temps  $t$ . L'évolution de ce champ de vecteurs dans l'espace et dans le temps est gouvernée par les équations de transport et d'interaction avec la phase dispersée.

### *Densité numérale de particules*

Pour pouvoir caractériser la phase dispersée, on définit également à chaque instant une fonction « densité numérale » de particules  $n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t)$  qui représente le nombre moyen de particules au lieu  $\mathbf{x}$  de l'espace des propriétés et  $\mathbf{r}$  de l'espace physique. Cette définition implique que le nombre moyen de particules dans un volume élémentaire  $dV_x dV_r$  de l'espace d'état des particules correspond à :

$$n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x dV_r \quad (\text{C1})$$

$dV_x$  et  $dV_r$  étant des volumes élémentaires respectivement de l'espace des propriétés et de l'espace physique. On peut ainsi calculer le nombre moyen de particules dans tout ou partie de l'espace d'état des particules. Le nombre total de particules dans la totalité du système est donnée par :

$$\int_{\Omega_x} \int_{\Omega_r} n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x dV_r \quad (\text{C2})$$

La densité numérale locale de particules ou nombre moyen de particules par unité de volume de l'espace physique, notée  $N(\mathbf{r}, t)$ , s'écrit :

$$N(\mathbf{r}, t) = \int_{\Omega_x} n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x \quad (\text{C3})$$

A partir de cette densité numérale de particules, il est également possible de déduire d'autres densités basées sur la masse ou sur le volume de la phase dispersée. Ainsi, si  $v(\mathbf{x})$  représente le volume d'une particule de coordonnées internes  $\mathbf{x}$ , alors la densité volumique de particules s'écrit :

$$v(\mathbf{x}) n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) \quad (\text{C4})$$

De même, à partir de la masse  $m(\mathbf{x})$  d'une particule de propriétés  $\mathbf{x}$ , on peut définir une densité massique de particules qui s'écrira :

$$m(\mathbf{x})n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) \quad (C5)$$

On suppose que l'ensemble de ces densités sont des fonctions continues des coordonnées  $\mathbf{x}$ ,  $\mathbf{r}$ , et  $t$ , bien que les particules soient par définition discrètes et que leur nombre devrait par conséquent être entier. Néanmoins, une telle hypothèse est parfaitement réaliste car  $n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t)$  représente la moyenne statistique du nombre de particules ; par conséquent, elle peut être supposée continue et plusieurs fois dérivable quelle que soit la variable considérée.

### *Vitesse d'évolution du vecteur d'état d'une particule*

Comme nous l'avons mentionné plus haut, l'état d'une particule peut évoluer au cours du temps, ce qui se caractérise par une variation de ses coordonnées externes et/ou internes. Par analogie avec l'évolution des coordonnées externes qui correspond à un déplacement des particules dans l'espace physique, celle des coordonnées internes peut être définie comme un déplacement à travers l'espace abstrait des propriétés. Par exemple, la croissance d'un cristal représente un déplacement suivant l'axe correspondant à la taille de particule, une réaction chimique d'une particule avec le gaz porteur un déplacement à travers l'espace multidimensionnel des concentrations, etc. Ces phénomènes s'apparentent à des déplacements physiques et peuvent donc être considérés comme des processus convectifs. On peut ainsi définir une vitesse d'évolution du vecteur d'état d'une particule, qui se compose :

- de la vitesse d'évolution des coordonnées internes qui dépend du vecteur  $\mathbf{x}$  des propriétés, de la localisation spatiale  $\mathbf{r}$  de la particule, des valeurs locales  $\mathbf{Y}$  des variables caractérisant la phase continue et du temps  $t$  ; elle est représentée par le vecteur  $\dot{\mathbf{X}}(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t)$  ;
- de la vitesse d'évolution des coordonnées externes représentée par le vecteur  $\dot{\mathbf{R}}(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t)$  caractérisant la vitesse de la particule dans l'espace physique.

La dépendance explicite de  $\dot{\mathbf{X}}$  vis-à-vis des coordonnées externes  $\mathbf{r}$  n'est généralement pas à prendre en compte puisque seuls l'état de la particule et son environnement déterminent son comportement.

A partir de cette définition de la vitesse d'évolution du vecteur d'état de la particule, il est possible d'obtenir le flux (numéral) de particules, autrement dit, le nombre instantané de particules traversant une unité de surface normale à la vitesse de déplacement. Ainsi, le flux de particules dans l'espace physique s'écrit :

$$n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) \cdot \dot{\mathbf{R}}(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t) \quad (C6)$$

tandis que le flux de particules à travers l'espace abstrait des coordonnées internes correspond à :

$$n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) \cdot \dot{\mathbf{X}}(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t) \quad (\text{C7})$$

Chacun de ces flux est évalué à l'instant  $t$  et au point de coordonnées  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  de l'espace d'état des particules.

### *Equation de transport de Reynolds*

L'utilisation de l'équation de transport de Reynolds permet d'obtenir simplement les équations de conservation en mécanique des milieux continus. Ramkrishna (2000) a formalisé cette approche dans le cas des bilans de population en considérant la phase dispersée comme faisant partie d'un continuum de matière recouvrant à la fois l'espace des coordonnées externes et internes des particules. Ce continuum de matière se déforme de manière continue avec le champ cinématique de l'espace d'état des particules ; par conséquent, les particules sont immobiles dans ce continuum. Si l'on considère une population de particules dans une région spécifique de l'espace d'état des particules, celle-ci va inclure un volume donné à la fois de l'espace physique mais aussi de l'espace des propriétés. Cette région est équivalente à un volume  $V(t)$  du continuum. Si l'on considère une propriété extensive, notée  $\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{r})$ , associée à une particule d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$ , alors la quantité extensive de cette propriété, présente dans toutes les particules, peut s'écrire :

$$\Phi(t) = \int_{V(t)} \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{r}) n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x dV_r \quad (\text{C8})$$

En généralisant l'équation de transport de Reynolds à un espace vectoriel quelconque, on obtient l'équation suivante :

$$\frac{D}{Dt} \int_{V(t)} \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{r}) n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x dV_r = \int_V \left( \frac{\partial(\varphi n)}{\partial t} + \text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} \varphi n \right) + \text{div}_r \left( \dot{\mathbf{R}} \varphi n \right) \right) dV_x dV_r \quad (\text{C9})$$

avec  $V$ , le volume d'intégration pouvant être considéré comme fixe et coïncidant à l'instant  $t$  avec le volume  $V(t)$  du continuum imaginaire.

### *Bilan de population*

Supposons que  $\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{r}) = 1$ , alors  $\Phi(t)$  représente le nombre total de particules dans un volume quelconque du continuum de matière défini précédemment, qui ne peut varier que par un processus d'apparition ou de disparition de particules. Soit  $H(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t)$ , la vitesse nette de production de particules d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  par unité de volume de l'espace d'état des

particules, à l'instant  $t$ , dans un environnement caractérisé par le vecteur  $\mathbf{Y}$ . Par conséquent, la conservation du nombre de particules s'écrit :

$$\frac{D}{Dt} \int_{V(t)} \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{r}) n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dV_x dV_r = \int_{V(t)} H(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t) dV_x dV_r \quad (\text{C10})$$

En appliquant l'équation de transport de Reynolds pour  $\varphi \equiv 1$  à l'équation précédente, on obtient :

$$\int_V \left( \frac{\partial n}{\partial t} + \text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} n \right) + \text{div}_r \left( \dot{\mathbf{R}} n \right) - H \right) dV_x dV_r = 0 \quad (\text{C11})$$

Nous avons considéré un volume d'intégration quelconque, ce qui permet d'obtenir à partir de l'équation précédente l'équation de bilan de population :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} n \right) + \text{div}_r \left( \dot{\mathbf{R}} n \right) = H \quad (\text{C12})$$

Cette équation ne diffère des équations classiques de conservation de la mécanique des milieux continus que par la variable  $n$  sur laquelle elle porte, et – surtout – par la présence du terme de divergence dans l'espace des propriétés  $\text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} n \right)$ .

Le terme  $H(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t)$  peut être décomposé en deux termes  $B$  et  $D$  décrivant respectivement l'apparition et la disparition de particules d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  :

$$H(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t) = B(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t) - D(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t) \quad (\text{C13})$$

On obtient ainsi la forme générale du bilan de population telle qu'elle a été proposée par Randolph et Larson (1971) :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \text{div}_x \left( \dot{\mathbf{X}} n \right) + \text{div}_r \left( \dot{\mathbf{R}} n \right) = B - D \quad (\text{C14})$$

## C.2. FORMULATION MATHÉMATIQUE DE L'AGGLOMÉRATION

L'agglomération qui entraîne la formation de nouvelles particules à partir de particules de plus petite taille, apparaît dans le bilan de population sous la forme de termes sources d'apparition et de disparition. La formulation de ces termes dépend en grande partie des hypothèses adoptées pour décrire le processus d'agglomération. La première hypothèse consiste à supposer que la densité de particules est suffisamment faible pour entraîner au plus l'agglomération de deux particules pendant un intervalle de temps  $[t, t+dt]$ . En termes de probabilité, cela peut se traduire par les deux conditions qui suivent :

- la probabilité que deux particules s'agglomèrent pendant l'intervalle de temps  $[t, t+dt]$  est de l'ordre de  $dt$  ;
- la probabilité pour que plus de deux particules s'agglomèrent et n'en forment plus qu'une seule pendant le même intervalle de temps  $[t, t+dt]$  est de l'ordre de  $dt^k$  avec  $k \geq 2$ .

Soit  $\beta(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}', t)$  la fréquence d'agglomération ou fraction de paires de particules d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  et  $(\mathbf{x}', \mathbf{r}')$  s'agglomérant par unité de temps. La probabilité que deux particules de vecteur d'état respectivement  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  et  $(\mathbf{x}', \mathbf{r}')$  s'agglomèrent pendant l'intervalle de temps  $[t, t+dt]$  s'écrit alors :

$$\beta(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}', t) dt \text{ ou } \beta(\mathbf{x}', \mathbf{r}', \mathbf{x}, \mathbf{r}, t) dt$$

la fréquence d'agglomération étant une fonction symétrique par rapport à l'état des particules.

Pour poursuivre la modélisation de l'agglomération, il est nécessaire de définir l'état de la particule formée au terme du processus d'agglomération et de lier mathématiquement cet état à celui des particules parentes. Cela suppose que les vecteurs d'état des particules parentes suffisent à définir l'état de la particule fille. Soient  $\mathbf{x}_1(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}')$  les coordonnées internes et  $\mathbf{r}_1(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}')$  les coordonnées externes d'une particule issue de l'agglomération d'une particule de vecteur d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  et d'une particule de vecteur d'état  $(\mathbf{x}', \mathbf{r}')$ . Définissons également  $\mathbf{x}'(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1)$  les coordonnées internes et  $\mathbf{r}'(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1)$  les coordonnées externes d'une particule s'agglomérant avec une particule de vecteur d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  pour former une particule de vecteur d'état  $(\mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1)$ . Bien entendu, ces définitions doivent tenir compte de restrictions physiques dues à la nature du phénomène d'agglomération, la nouvelle particule doit notamment avoir une taille supérieure à celle des deux particules parentes.

Enfin, la description mathématique complète du processus d'agglomération nécessite de définir le nombre de paires de particules dans un état donné à chaque instant  $t$ . Nous appellerons donc  $n_2(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}', t)$  la densité moyenne de paires de particules de vecteurs d'état  $(\mathbf{x}, \mathbf{r})$  et  $(\mathbf{x}', \mathbf{r}')$  à l'instant  $t$ .

A partir de ces définitions, le terme d'apparition de particules d'état  $(\mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1)$ , à l'instant  $t$ , dans un environnement caractérisé par le vecteur d'état  $\mathbf{Y}$ , s'écrit sous la forme :

$$B_{agglo}(\mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1) = \int_{V_x} dV_x \int_{V_r} \frac{1}{\delta} \beta(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}') n_2(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}') dV_r \quad (C15)$$

soit, d'après les définitions de  $\mathbf{x}'$  et  $\mathbf{r}'$  :

$$B_{agglo}(\mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1, \mathbf{Y}, t) = \int_{V_x} dV_x \int_{V_r} \frac{1}{\delta} \beta(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1) n_2(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}_1, \mathbf{r}_1, t) dV_r \quad (C16)$$

$\delta$  représente le nombre de fois où des paires identiques ont été prises en compte sur l'intervalle d'intégration ; le terme  $1/\delta$  permet ainsi de corriger les redondances.

Le terme de disparition s'écrit quant à lui :

$$D_{agglo}(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{Y}, t) = \int_{V_x} dV_x \int_{V_r} \frac{1}{\delta} \beta(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}') n_2(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}', t) dV_r \quad (C17)$$

Avec l'introduction de la fonction  $n_2$  dans les termes de disparition et d'apparition, nous obtenons une équation de bilan de population ouverte, ce qui nécessite une équation supplémentaire permettant de décrire  $n_2$ . Ramkrishna (2000) propose d'utiliser l'approximation suivante :

$$n_2(\mathbf{x}, \mathbf{r}, \mathbf{x}', \mathbf{r}', t) = n(\mathbf{x}, \mathbf{r}, t) n(\mathbf{x}', \mathbf{r}', t) \quad (C18)$$

ce qui signifie que les particules représentées par  $n_2$  sont statistiquement indépendantes les unes des autres.

Considérons une population de particules distribuée suivant le volume et répartie de façon uniforme dans l'espace physique, le bilan de population dans le cas d'une évolution par agglomération peut s'écrire :

$$\frac{\partial n(v, t)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v', v - v') n(v', t) n(v - v', t) dv' - \int_0^\infty \beta(v', v) n(v', t) n(v, t) dv' \quad (C19)$$

avec :  $n(v, t)$  densité de particules de volume  $v$  à l'instant  $t$  (nb. part m<sup>-6</sup>)  
 $\beta(v, v')$  noyau d'agglomération entre une particule de volume  $v$  et une particule de volume  $v'$  (m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>)

### C.3. METHODES DE DISCRETISATION DES EQUATIONS DU BILAN DE POPULATION

Le système d'équations correspondant à la formulation discrète du bilan de population (équations (4.21) et (4.22)) contient un nombre de variables indépendantes supérieur au nombre d'équations. Pour résoudre le système, il est donc nécessaire de le transformer en un système d'équations fermé en exprimant  $n(v, z)$  en fonction des variables  $N_i$  seules. La littérature propose plusieurs méthodes pour y parvenir :

- la méthode « M-I »,
- la méthode « M-II »,
- le principe de conservation de deux propriétés.

#### *L'approximation « M-I »*

L'approximation « M-I », consiste à appliquer le théorème de la moyenne sur le noyau d'agglomération. On obtient alors l'expression suivante :

$$\int_{v_i}^{v_{i+1}} dv \int_{v_k}^{v_{k+1}} \beta(v, v') n(v, z) n(v', z) dv' = \beta_{i,k} N_i(z) N_k(z) \quad (C20)$$

avec :

$$\beta_{i,k} = \beta(x_i, x_k) \quad (C21)$$

Ce type d'approximation a surtout été utilisé pour résoudre le système sur la base d'un maillage régulier. C'est le cas des travaux de Hidy et Brock (1970) dans lequel les particules appartenant à l'intervalle  $[v_i, v_{i+1}]$  sont supposées être concentrées à des volumes  $x_i$  tels que  $x_i = i.x_1$ . Les équations du système sont alors obtenues en exprimant la densité de particules par :

$$n(v, t) = \sum_{j=1}^M N_j \delta(v - x_j) \quad (C22)$$

$$\delta(v - x_j) = 1 \text{ si } v = x_j \text{ sinon } \delta(v - x_j) = 0$$

avec :  $M$  nombre de sections.

Cette technique permet d'atteindre une bonne précision dans le calcul des distributions et des moments des distributions, mais nécessite un maillage très fin ce qui entraîne des temps de calcul importants lorsque la gamme des tailles de particules est étendue. Pour obtenir une résolution plus rapide, Batterham et al. (1981) ont employé la même méthode que Hidy et Brock (1970), mais en utilisant un maillage géométrique tel que  $v_{i+1} = 2v_i$ , ce qui leur a permis de réduire le nombre d'équations à résoudre. Malheureusement, ces équations, si elles conservent la masse, ne préservent pas le nombre total de particules ni les autres moments de la distribution.

Hounslow et al. (1988) ont repris la discrétisation obtenue à partir du maillage géométrique de Batterham et al. (1981), mais ont émis des hypothèses différentes sur la distribution des particules dans les sections. Le système d'équations qu'ils obtiennent préserve le nombre total de particules mais ne permet pas de conserver la masse sans l'introduction d'un terme correctif.

Ainsi, on peut remarquer que les modèles basés sur l'approche M-I sont limités à des maillages réguliers et entraînent des temps de calcul élevés lorsque le domaine de taille de particules est étendue. Par ailleurs, l'utilisation de maillages de type géométrique ne permet pas de prédire correctement l'évolution des moments de distribution.

### *L'approche M-II*

L'approche M-II consiste à appliquer le théorème de la moyenne sur la densité numérale. On obtient alors l'expression suivante :

$$\int_{v_i}^{v_{i+1}} dv \int_{v_k}^{v_{k+1}} \beta(v, v') n(v, z) n(v', z) dv' = \bar{n}_i(z) \bar{n}_k(z) \int_{v_i}^{v_{i+1}} dv \int_{v_k}^{v_{k+1}} \beta(v, v') dv' \quad (C23)$$

avec :

$$\bar{n}_i = \frac{1}{v_{i+1} - v_i} \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v, t) dv \quad (C24)$$

Comme l'ont montré Kumar et Ramkrishna (1996) à travers une revue bibliographique critique, l'ensemble des modèles utilisant cette méthode génère des problèmes de conservation des moments de distribution. Par ailleurs, la résolution des équations obtenues à partir de cette technique est extrêmement coûteuse, du fait de la présence des doubles intégrales.

### *Le principe de préservation de deux propriétés*

Récemment, Kumar et Ramkrishna (1996) ont proposé une nouvelle approche afin de pallier les problèmes rencontrés lors de l'utilisation des approximations M-I et M-II. Cette méthode très générale s'utilise quel que soit le maillage employé et ne nécessite pas l'introduction de paramètres correctifs en fonction des cas étudiés. Proche de l'approximation M-I, elle est basée sur la préservation de deux propriétés que l'on peut choisir en fonction de la nature du problème. En effet, lorsqu'on étudie les phénomènes d'agglomération, on cherche le plus souvent à modéliser l'évolution des grandeurs caractérisant les particules et à suivre une propriété  $P(t)$  représentative de l'ensemble de la population de particules (nombre total de particules, masse totale, etc.). Cette propriété peut être calculée à partir de sa valeur  $p(v)$  pour chacune des particules de volume  $v$  :

$$P(t) = \int_0^{\infty} p(v)n(v,t)dv \quad (C25)$$

Pour connaître l'évolution de  $P(t)$ , il suffit de suivre l'évolution de  $n(v,t)$ , puis de calculer les propriétés intégrales. Ainsi, plutôt que de calculer directement l'évolution de la propriété  $P(t)$ , Kumar et Ramkrishna (1996) propose de se focaliser sur la préservation exacte de la propriété  $p(v)$  au cours de son évolution. La discrétisation des équations de bilan de population doit alors garantir la consistance de l'évolution de  $P(t)$ . Par ailleurs, les auteurs ont montré qu'il fallait assurer la préservation d'au moins deux propriétés  $P_1(t)$  et  $P_2(t)$  pour que celles-ci décrivent correctement un événement d'agglomération.

La répartition des nouvelles particules créées par agglomération représente le principale obstacle à la préservation des propriétés. Comme nous l'avons expliqué précédemment, le modèle à sections suppose que les particules n'existent qu'à certains volumes représentatifs  $x_i$ . Or, si le maillage ne correspond pas à une suite arithmétique ( $x_i = i \cdot x_1$ ), l'agglomération peut engendrer des particules dont la taille ne correspond pas à ces volumes représentatifs. Leur répartition dans les différentes sections engendrent souvent une approximation de  $p(v)$ . Pour assurer une préservation exacte des propriétés  $p_1(v)$  et  $p_2(v)$ , Kumar et Ramkrishna (1996) proposent de représenter la formation d'une nouvelle particule de volume  $v$  inclus dans l'intervalle  $[x_i, x_{i+1}]$ , en attribuant respectivement une fraction de particules  $a(v, x_i)$  et  $b(v, x_{i+1})$  aux classes de particules  $x_i$  et  $x_{i+1}$ . Ces fractions sont définies de la façon suivante :

$$a(v, x_i)p_1(x_i) + b(v, x_{i+1})p_1(x_{i+1}) = p_1(v) \quad (C26)$$

$$a(v, x_i)p_2(x_i) + b(v, x_{i+1})p_2(x_{i+1}) = p_2(v) \quad (C27)$$

En ce qui concerne notre étude, nous nous intéressons plus particulièrement au nombre et au volume des particules, ce qui correspond à  $p_1(v) = 1$  et  $p_2(v) = v$ . On a alors :

$$a(v, x_i) = \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i} \text{ et } b(v, x_{i+1}) = \frac{v - x_i}{x_{i+1} - x_i} \quad (C28)$$

A partir de cette répartition des particules dans les différentes sections et en appliquant le théorème de la moyenne sur les noyaux d'agglomération, il est ensuite aisé d'obtenir un système d'équations fermé dont la résolution permet de décrire avec une excellente précision l'évolution des particules sous l'effet de l'agglomération. C'est cette approche que nous avons choisi d'utiliser dans notre modèle.

L'apparition et la disparition de particules par agglomération dans la classe  $i$  est modélisée dans l'équation du bilan de population par deux termes source (respectivement  $B_{agg,i}$  et  $D_{agg,i}$ ) :

$$B_{agg,i} = \frac{1}{2} \int_{v_i}^{v_{i+1}} dv \int_0^v \beta(v', v-v')n(v', z)n(v-v', z)dv' \quad (C29)$$

$$D_{agg,i} = \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v, z) dv \int_0^\infty \beta(v', v) n(v', z) dv' \quad (C30)$$

Le principe de préservation permet d'obtenir un système d'équations fermé, en exprimant ces deux termes en fonction de  $N_i$  (densité numérique moyenne de particules dans la classe  $i$ ). On attribue à la population de particules de volume représentatif  $x_i$  une partie des particules apparaissant dans l'intervalle  $[x_{i-1}, x_i]$ , représentée par la fraction  $b(v, x_i)$ , et une partie des particules apparaissant dans l'intervalle  $[x_i, x_{i+1}]$ , représentée par la fraction  $a(v, x_i)$ . Le terme d'apparition des particules devient :

$$B_{agg,i} = \frac{1}{2} \int_{x_i}^{x_{i+1}} a(v, x_i) dv \int_0^v \beta(v', v-v') n(v', z) n(v-v', z) dv' \\ + \frac{1}{2} \int_{x_{i-1}}^{x_i} b(v, x_i) dv \int_0^v \beta(v', v-v') n(v', z) n(v-v', z) dv' \quad (C31)$$

Puisque la population de particules est supposée être concentrée à des volumes représentatifs, on peut écrire la densité numérique de particules sous la forme :

$$n(v) = \sum_{k=1}^M N_k \delta(v - x_k) \quad (C32)$$

avec :  $\delta$  fonction de Dirac.

Le terme d'apparition de particules devient :

$$B_{agg,i} = \sum_{\substack{j,k \\ x_{i-1} \leq (x_j + x_k) \leq x_{i+1}}}^{j \geq k} \left( 1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k} \right) \eta \beta_{j,k} N_j(z) N_k(z) \quad (C33)$$

$$\eta = \begin{cases} \frac{x_{i+1} - v}{x_{i+1} - x_i}, & \text{si } x_i \leq v \leq x_{i+1} \\ \frac{v - x_{i-1}}{x_i - x_{i-1}}, & \text{si } x_{i-1} \leq v \leq x_i \end{cases} \quad \text{avec } v = x_j + x_k$$

$$\beta_{j,k} = \beta(x_j, x_k)$$

avec :  $\delta_{j,k}$  symbole de Kronecker.

Le terme de disparition des particules s'écrit plus simplement :

$$D_{agg,i} = N_i(z) \sum_{k=1}^M \beta_{i,k} N_k(z) \quad (C34)$$



# Annexe D :

## Quelques données thermo-physiques du modèle

$z$ (m)	$T_{\text{gaz}}$ (K)	$Q_{\text{gaz}}$ ( $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ )	$V_{\text{gaz}}$ ( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )	$\rho_{\text{gaz}}$ ( $\text{kg m}^{-3}$ )	$k_g$ ( $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ )	$\mu_p$ ( $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ )	$\rho_p$ ( $\text{kg m}^{-3}$ )	$\sigma_p$ ( $\text{N m}^{-1}$ )
0,0	1800,00	0,56	3,43E-04	1,87E-01	9,54	3,06E-02	3214,19	5,62E-01
0,5	1744,57	0,79	3,05E-04	1,98E-01	7,85	3,82E-02	3232,06	5,54E-01
1,0	1689,13	1,02	2,75E-04	2,09E-01	6,11	4,84E-02	3249,92	5,45E-01
1,5	1633,70	1,25	2,50E-04	2,22E-01	4,33	6,26E-02	3267,79	5,37E-01
2,0	1578,26	1,48	2,28E-04	2,35E-01	2,48	8,23E-02	3285,66	5,29E-01
2,5	1531,71	1,62	2,14E-04	2,45E-01	1,37	1,05E-01	3300,66	5,22E-01
3,0	1498,49	1,62	2,07E-04	2,50E-01	1,44	1,27E-01	3311,36	5,17E-01
3,5	1465,27	1,62	2,00E-04	2,56E-01	1,50	1,54E-01	3322,07	5,12E-01
4,0	1432,05	1,61	1,94E-04	2,61E-01	1,56	1,89E-01	3332,78	5,07E-01
4,5	1398,83	1,61	1,87E-04	2,67E-01	1,61	2,35E-01	3343,48	5,02E-01
5,0	1365,60	1,61	1,80E-04	2,73E-01	1,67	2,94E-01	3354,19	4,97E-01
5,5	1332,38	1,61	1,74E-04	2,80E-01	1,72	3,73E-01	3364,90	4,92E-01
6,5	1265,94	1,60	1,61E-04	2,94E-01	1,83	6,25E-01	3386,31	4,82E-01
7,5	1199,50	1,60	1,48E-04	3,09E-01	1,92	1,11	3407,72	4,72E-01
8,5	1133,05	1,59	1,36E-04	3,27E-01	2,01	2,12	3429,14	4,62E-01
9,5	1066,61	1,59	1,24E-04	3,46E-01	2,10	4,40	3450,55	4,52E-01
10,5	1000,17	1,58	1,12E-04	3,69E-01	2,17	10,10	3471,97	4,42E-01
11,5	933,72	1,58	1,00E-04	3,94E-01	2,23	26,24	3493,38	4,32E-01
12,5	867,28	1,57	8,91E-05	4,23E-01	2,27	79,31	3514,79	4,22E-01
13,5	800,84	1,57	7,84E-05	4,57E-01	2,29	289,81	3536,21	4,12E-01
14,5	734,40	1,56	6,80E-05	4,98E-01	2,27	1349,04	3557,62	4,02E-01
15,5	667,95	1,56	5,81E-05	5,46E-01	2,19	8604,47	3579,03	3,92E-01
16,5	601,51	1,55	4,88E-05	6,05E-01	2,01	83556,12	3600,45	3,82E-01
17,5	554,08	1,55	4,24E-05	6,56E-01	1,79	595837,42	3615,73	3,75E-01
18,5	551,00	1,54	4,20E-05	6,59E-01	1,78	685023,61	3616,73	3,75E-01
19,5	547,92	1,53	4,16E-05	6,63E-01	1,77	788820,03	3617,72	3,74E-01
20,5	544,84	1,52	4,12E-05	6,67E-01	1,76	909822,79	3618,71	3,74E-01
25,5	529,44	1,48	3,92E-05	6,86E-01	1,69	1904946,90	3623,67	3,71E-01
30,5	514,04	1,44	3,72E-05	7,07E-01	1,61	4172675,97	3628,64	3,69E-01

35,5	498,64	1,39	3,53E-05	7,28E-01	1,52	9602408,92	3633,60	3,67E-01
40,5	483,24	1,35	3,34E-05	7,52E-01	1,40	23326052,59	3638,56	3,64E-01
45,5	467,84	1,31	3,16E-05	7,76E-01	1,26	60135631,95	3643,53	3,62E-01



## Résumé

Comment se forment les poussières dans un four électrique à arc d'aciérie et comment réduire leur quantité ? Telles sont les deux questions qui ont motivé ce travail. La caractérisation morpho-minéralogique des particules qui les composent suggère que l'éclatement des bulles de monoxyde de carbone à la surface du bain d'acier liquide est la principale source d'émission de poussière. Nous avons donc développé un dispositif expérimental original permettant de visualiser ce phénomène et de quantifier les gouttelettes projetées lors de l'éclatement d'une bulle. Les résultats obtenus montrent que ce sont les gouttes issues de la fragmentation du film liquide soulevé par la bulle, qui représentent la contribution majeure à la formation des poussières. La masse de gouttes de film émises est d'autant plus faible que les bulles sont petites, elle devient nulle pour une taille de bulle inférieure à 4,5 mm. Il est donc possible de réduire les émissions de poussières en maîtrisant la décarburation, à l'origine de la formation des bulles au four électrique. Après émission, les projections sont entraînées dans le système de captage des fumées où elles subissent des phénomènes d'agglomération, de coalescence et de frittage. Un modèle numérique décrivant ces phénomènes a été développé. Les résultats donnés par le calcul en termes de morphologie et de granulométrie sont très proches des caractéristiques réelles des poussières. A l'aide de ce modèle, nous avons pu préciser l'influence des conditions de captage (température, débit d'aspiration, géométrie des conduites) sur l'évolution des particules. Nous avons également déterminé par quels mécanismes et dans quelles parties du captage se forment les différentes catégories de particules, et nous avons expliqué les différences granulométriques observées entre les poussières de four électrique et celles de convertisseur.

**Mots-clés :** sidérurgie, four électrique à arc, poussière, réduction des émissions, décarburation, acier liquide, éclatement de bulles, vidéo rapide, projections, agglomération, morphologie, granulométrie, bilan de population.

---

## Abstract

How does dust form in steelmaking electric arc furnace and how to reduce it. These are both questions which launched this study. The morpho-mineralogical characterization of dust particles reveals that bubble burst at the liquid steel surface is the principal source of dust emission. We therefore designed an original experimental device for studying this phenomenon and quantifying the projected droplets. The results obtained lead to the conclusion that the film drops coming from the fragmentation of the bubble cap represent the major contribution to dust formation. A significant decrease of the amount of emitted droplets can be achieved by decreasing the size of the bursting bubbles. Eventually, below 4.5 mm in diameter, no film drops are projected. This would require an excellent control of the decarburization reaction which is responsible for bubble formation. After emission, these particles are exhausted by the fume extraction system where they undergo agglomeration and sintering. In order to describe these phenomena, we developed a numerical model whose results are very close to the morphological and granulometric characteristics of electric arc furnace dust. Using this model, we have been able to determine the influence of the extraction conditions on the evolution of dust particles. We have also identified for each part of the fume extraction system the mechanisms involved in the formation of the different types of particles and we have explained the differences of granulometry observed between electric arc furnace dust and basic oxygen furnace dust.

**Key-words:** steelmaking, electric arc furnace, dust, reduction of the emissions, decarburization, liquid steel, bubble burst, projections, agglomeration, morphology, granulometry, population balance.