HAL
open science

Séparation des particules ultrafines métalliques par lits granulaires

Loïc Wingert

To cite this version:

Loïc Wingert. Séparation des particules ultrafines métalliques par lits granulaires. Génie chimique. Université de Lorraine, 2017. Français. NNT : 2017LORR0019 . tel-01661392

HAL Id: tel-01661392

https://theses.hal.science/tel-01661392

Submitted on 11 Dec 2017

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.

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Laboratoire Réactions
et Génie des procédés
(LRGP)

Ecole Doctorale
Ressources Procédés Produits Environnements
(RP2E)

Institut National de Recherche
et de Sécurité
(INRS)

Thèse

présentée en vue de l'obtention du grade de

Docteur de l'Université de Lorraine
spécialité
Génie des Procédés et des Produits

Par

Loïc Wingert

Séparation des particules ultrafines métalliques par lits granulaires

Soutenue le 1er Mars 2017 devant le Jury composé de :

Rapporteurs :	**Marie-Hélène MANERO**	Professeur à l'Université Paul Sabatier de Toulouse
	Denis BOULAUD	Directeur adjoint de l'Environnement et de l'Intervention à l'IRSN
Examinateurs :	**Yves GONTHIER**	Professeur à l'Université de Savoie Mont-Blanc (USBM)
	Nathalie BARDIN-MONNIER	Maitre de Conférence à l'Université de Lorraine
	Denis BEMER	Responsable d'études à l'INRS
	Dominique THOMAS	Professeur à l'Université de Lorraine
Invité :	**Augustin CHARVET**	Maitre de Conférence à l'Université de Lorraine

Laboratoire Réactions et Génie des Procédés – 1 rue Grandville – 54000 Nancy
Institut National de Recherche et de Sécurité – 1 rue du Morvan – 54500 Vandœuvre-lès-Nancy

Remerciements

En préambule, je souhaite insister sur le fait que, si la paternité de la thèse revient au doctorant, son contenu ne saurait être en revanche l'œuvre d'une seule personne. En effet, les résultats présentés par la suite sont le fruit d'un long travail mené en collaboration à l'Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS) et au Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP).

A ce titre, je souhaite tout d'abord remercier Messieurs Michel Pourquet, anciennement chef du département Ingénierie des Procédés, et Eric Silvente, chef du laboratoire Procédés d'Epuration, de m'avoir accueilli à l'INRS. Je remercie également pour son accueil Monsieur Laurent Falk, Directeur du LRGP. Enfin, je remercie chaleureusement Olivier Dufaut, Professeur à l'Université de Lorraine et chef de l'équipe SAFE au LRGP, pour son accueil, son aide et sa bonne humeur. Je remercie également Monsieur Didier Baptiste, directeur scientifique de l'INRS, pour sa disponibilité et sa volonté d'aider les doctorants à accomplir leur projet d'après-thèse.

J'adresse également mes plus sincères remerciements à tous mes encadrants, Dominique Thomas, Professeur à l'Université de Lorraine et Directeur de thèse, Nathalie Bardin-Monnier, Maitre de Conférence à l'Université de Lorraine et Co-Directrice de thèse, Augustin Charvet, Maitre de Conférence à l'Université de Lorraine et Denis Bémer Responsable d'Etude à l'Institut National de Recherche et de Sécurité pour leur soutien et leur disponibilité au quotidien. Cela a permis de nombreux échanges qui ont incontestablement enrichi ce travail. Sur un plan humain, je tiens à leur témoigner ma sympathie et les remercie également pour l'excellente ambiance de travail et les bons moments qui ont marqué ces quatre années.

Mes remerciements vont également à Madame Marie-Hélène Manero, Professeur à l'Université Paul Sabatier de Toulouse, et à Monsieur Denis Boulaud, Directeur Adjoint de l'Environnement à l'Institut de Radioprotection et de Sureté Nucléaire, qui ont accepté de rapporter cette thèse. Je remercie également Monsieur Yves Gonthier, Professeur à l'Université de Savoie Mont-Blanc, pour avoir accepté de présider le jury de thèse.

Je souhaite par ailleurs témoigner toute ma reconnaissance envers Stéphanie Pacault et Quentin Ribeyre et je les remercie pour leur aide plus que précieuse et leur disponibilité qui ont permis un travail efficace et par conséquent d'augmenter significativement le champ couvert par ce manuscrit. Je les remercie également pour leur sympathie au quotidien. Enfin, j'adresse une mention spéciale aux récents Monsieur et Madame Ribeyre et leur souhaite une vie heureuse.

Parmi les personnes ayant fortement contribué à ce travail figurent également les membres des ateliers et services techniques du LRGP et de l'INRS qui ont permis de concrétiser nos projets expérimentaux et de matérialiser nos idées (parfois fumeuses…). Pour cela et pour leur écoute, je tiens également à les remercier chaleureusement.

Je souhaite plus largement remercier tous les membres du LRGP et de l'INRS qui ont pu de près ou de loin contribuer à ce doctorat en m'apportant une aide ponctuelle ou bien par leur sympathie notamment Frantz Fournier, Jean-Christophe Appert-Colin, François Brandt, Hubert Monnier, Jean-Pierre Leclerc, Armelle Orel, Sandrine Chazelet, Isabelle Subra, Yves Morèle, Fabien Gérardin, Marie-Thérèse Lecler… J'en oublie surement et d'avance je m'en excuse.

J'adresse également mes remerciements à l'ensemble des stagiaires, doctorants et post-doctorants qui ont partagé durant 4 années travail, soirées, sports et voyages, notamment : Quentin, Miriam, Carlos, David, Selven, Zineb (qui ne se rend à l'évidence qu'à la fin …), Youssef, Karine, Guillemette, Charlotte, Nico, Vivian, Jérémie… Merci à tous pour ces moments qui ont contribué à faire de la thèse une expérience inoubliable.

Je souhaite également remercier les membres de mon club de course, le CAN St-Max, qui m'a permis de continuer à pratiquer ma passion et apporté un équilibre nécessaire au bon déroulement de mes projets.

A mes amis de Strasbourg et Grenoble : Tibo, Tof, Caro, Jojo, Adrieng, Arnaud, Loulou, j'adresse également mes remerciements pour m'avoir aidé et soutenu en toutes circonstances depuis toutes ces années, ne changez pas…

Je remercie et dédie ce travail finalement à ma famille : mon père et ma mère à qui je dois, quoi qu'il ait pu advenir, tout ce que je suis aujourd'hui ; mon frère et ma marraine qui ont toujours été présents inconditionnellement pour moi.

Enfin, je rends hommage aux personnes disparues au cours de ces quatre ans, notamment à ZanZan, parti beaucoup trop tôt et qui aurait dû figurer deux paragraphes plus haut... Ce travail leur est également dédié.

“La vie est comme une pièce de théâtre : ce qui compte, ce n'est pas qu'elle dure longtemps, mais qu'elle soit bien jouée.”

Sénèque

Table des matières

Table des figures 1
Table des tableaux 7
Introduction générale 8
I. Contexte général 11
I.1 Préambule terminologique 11
I.2 Les nanomatériaux dans le monde moderne 13
I.2.1 Un peu d'histoire 13
I.2.2 Domaines d'application des nanomatériaux 14
I.3 Effets sur la santé 15
I.4 Stratégies de protection respiratoire contre les nanomatériaux 16
I.5 Epuration des rejets industriels de particules ultrafines métalliques 19
I.5.1 Les électrofiltres ou précipitateurs électrostatiques 19
I.5.2 Les médias filtrants ou couches filtrantes 21
I.6 Conclusion 29
Références 31
II. Etude expérimentale du colmatage de lits granulaires 33
II.1 Matériels & Méthodes 33
II.1.1 Génération et caractérisation des aérosols 33
II.1.2 Montage expérimental 35
II.1.3 Méthode de suivi du colmatage des lits granulaires 37
II.2 Résultats expérimentaux 39
II.2.1 Récapitulatif des conditions expérimentales 39
II.2.2 Validation du protocole expérimental 41
II.2.3 Evolution de l'efficacité de collecte et de la perte de charge 42
II.3 Conclusions 48
Références 50
III. Simulation numérique de la filtration de particules ultrafines par lits granulaires 51
III.1 Etat de l'art 51
III.2 Simulation de la filtration par lits granulaires avec GeoDict® 55
III.2.1 Création des milieux poreux virtuels 55
III.2.2 Calcul des écoulements 60
III.2.3 Simulation de l'état initial 62

III.2.4 Simulation du colmatage 77
III.3 Conclusion 91
Références 93
IV. Etude de la morphologie des dépôts de particules ultrafines à la surface de collecteurs sphériques 94
IV.1 Etat de l'art 94
IV.1.1 Morphologie des dépôts de particules lors de la filtration d'hydrosols 94
IV.1.2 Morphologie des dépôts de particules lors de la filtration d'aérosols 98
IV.2 Matériels et méthodes 104
IV.2.1 Exposition d'une ligne et d'une nappe de collecteurs sphériques à un flux d'aérosol 104
IV.2.2 Conditions opératoires 105
IV.2.3 Observation des dépôts 106
IV.3 Résultats 108
IV.3.1 Analyse des dépôts de nanoparticules sur une ligne de billes 108
IV.3.2 Analyse des dépôts de nanoparticules sur une nappe de billes 110
IV.4 Conclusions 121
Références 123
V. Modélisation de la filtration d'aérosols de particules ultrafines par lits granulaires 124
V.1 Etat de l'art 124
V.1.1 Modélisation des performances initiales des lits granulaires 124
V.1.2 Modélisation de la perte de charge d'un dépôt de particules ultrafines 134
V.1.3 Modélisation de l'évolution des performances des lits granulaires au cours du colmatage 135
V.2 Développement d'un modèle de colmatage de lits granulaires par des particules ultrafines 147
V.2.1 Développements des expressions de diamètres de collecteur équivalent en fonction de la masse déposée. 147
V.2.2 Procédure de calcul 151
V.3 Comparaison des données du modèle et les résultats expérimentaux 152
V.3.1 Détermination du critère de transition, β* 152
V.3.2 Evolution de l'efficacité et de la perte de charge en cours de colmatage 153
V.3.3 Etude de sensibilité du modèle 157
V.4 Conclusion 160
Références 162
VI. Optimisation de la durée de vie des lits granulaires 165

VI.1 Etat de l'art 165
VI.1.1 Lits granulaires mouvants ou circulants 165
VI.1.2 Les panneaux à lits filtrants (Panel-Bed) 171
VI.1.3 Les lits granulaires bicouches 173
VI.1.4 Récapitulatif 176
VI.2 Utilisation d'un lit granulaire multicouche pour la filtration de PUF 176
VI.2.1 Détermination de la combinaison optimale de diamètres de collecteurs 178
VI.2.2 Apport des 2 combinaisons optimales 183
VI.2.3 Comparaison des performances de médias fibreux avec celles du lit granulaire tricouche optimisé (L-GTO) 185
VI.3 Restauration de la perte de charge d'un lit granulaire 187
VI.4 Conclusions et perspectives 189
VI.4.1 Optimisation de la durée de vie des lits granulaires 189
VI.4.2 Dans la perspective d'une utilisation industrielle 190
Références 193
Conclusion générale 195

Table des figures

Figure I-1 Echelle des dimensions (D'après Ricaud et Witschger 2012) 11
Figure I-2 Nombre d'articles cumulé sur les nanotechnologies entre 2006 et 2015 (« StatNano Annual Report 2015 » 2016)..... 14
Figure I-3 Nombre d'articles publiés sur différents nanomatériaux entre 2004 et 2013 (« Which nanomaterials have been studied more? » 2014) 14
Figure I-4 Probabilité de dépôt d'un aérosol dans l'arbre pulmonaire en fonction de sa taille et du mode de respiration (Ricaud et Witschger 2012) 16
Figure I-5 Schéma de principe d'un électrofiltre (d'après Le Coq 2016)..... 20
Figure I-6 Illustrations du principe des différents mécanismes de transport (d'après Le Coq 2016) ... 21
Figure I-7 Evolutions qualitatives des efficacités de collecte d'un média filtrant pour les différents mécanismes de collectes (d'après Le Coq 2016)..... 23
Figure I-8 Consommation des textiles utilisés en filtration en milliers de tonnes dans le monde (Payen 2009)..... 24
Figure I-9 Schéma de principe d'une installation industrielle de dépoussiérage utilisant un filtre à manches (gauche) et d'un élément de filtre à poches (droite)..... 24
Figure I-10 Exemples de cartouche plissée (gauche) et de cassette plissée (droite)..... 25
Figure I-11 Evolution qualitative de la perte de charge d'une cartouche plissée au cours de son cycle de fonctionnement (Lo, Chen, et Pui 2010) 27
Figure II-1 Schéma de la chambre de génération du générateur du PALAS GFG 1000..... 33
Figure II-2 Schéma de principe du générateur de fumées de métallisation utilisé lors des colmatages des lits granulaires..... 34
Figure II-3 Distributions granulométriques en nombre des aérosols de carbone, de fer et de zinc-aluminium..... 35
Figure II-4 Montage expérimental pour le suivi du colmatage de lits granulaires par des nanoparticules..... 36
Figure II-5 Comparaison des distributions granulométriques cumulées des fumées de métallisation (Zn-Al) mesurées par le SMPS basse résolution (Nanoscan 3910, TSI) et le SMPS haute résolution (DMA 3080 + CPC 3776, TSI)..... 37
Figure II-6 Résultats expérimentaux d'évolution d'efficacité et de perte de charge pour chaque configuration (ID 1 à 6)..... 43
Figure II-7 Evolutions temporelles de l'efficacité et de la perte de charge lors de l'expérience 1 et détermination des différentes grandeurs à la transition entre la phase B et la phase C 44
Figure II-8 Représentations schématiques du colmatage d'un lit granulaire au début de la phase C (1,2,3) / Comparaison des pentes d'évolution de la perte de charge entre la phase C et le modèle de Thomas et al. (2014) (4) 46
Figure II-9 Observation au microscope de la surface d'un lit granulaire durant la phase C (Fin de l'expérience n°=1)..... 47
Figure II-10 Observation au microscope d'une zone de la surface d'un lit granulaire temporairement débouchée pendant la phase C (Fin de l'expérience n°=1)..... 47
Figure III-1 Illustration d'un tube à étranglement (d'après Chaumeil et Crapper (2014))..... 52
Figure III-2 Lit granulaire généré par le mode Pack (diamètre des sphères: 1mm, Profondeur: 1 cm, Porosité: 0,37) 56

Figure III-3 Exemple de lit granulaire généré par le mode Pile (diamètre des sphères: 1 mm, Profondeur 1 cm) 57
Figure III-4 Taux de compression requis pour la formation de RCP en fonction du ratio profondeur/diamètre des collecteurs 58
Figure III-5 Exemple de RCP générés par compression de RLP pour des valeurs de ϕ de 1,25 et 10 ... 59
Figure III-6 Allure de la courbe d'évolution de la vitesse d'écoulement en fonction de la perte de charge d'un milieu poreux (D'après le guide utilisateur de GeoDict®) 60
Figure III-7 Evolution expérimentale de la perte de charge en fonction de la vitesse superficielle (Profondeur = 10 cm, Diamètre des collecteurs = 1mm) (d'après Drescher, 2013) 61
Figure III-8 Collecteurs virtuels générés selon deux tailles de voxels: 100 µm à gauche et 5 µm à droite 63
Figure III-9 Evolution de la profondeur et de la perte de charge par unité de profondeur d'un lit granulaire en fonction de la taille des voxels 63
Figure III-10 Lignes de courant d'un écoulement autour d'un collecteur sphérique (Taille de voxels = 20 µm) 64
Figure III-11 Efficacité résiduelle de collecte en fonction de la taille des voxels (Z_{LG} = 1 cm, d_c = 1mm) 65
Figure III-12 Efficacité fractionnelle pour différentes tailles de voxels comprises entre 5 et 100µm (Z_{LG} = 1 cm, d_c = 1mm) 67
Figure III-13 Efficacités résiduelles simulées et efficacités résiduelles unitaires calculées avec l'équation 3 pour des lits de différentes profondeurs (Taille des voxels = 10 µm) 68
Figure III-14 Perte de charge simulée en fonction de la taille des voxels pour 3 random seed différents (Z_{LG} = 1 cm, d_c = 1mm) 69
Figure III-15 Ecarts moyens de perte de charge entre des lits granulaires générés à partir de différents random seed en fonction du ratio ϕ 70
Figure III-16 Ecarts d'efficacités fractionnelles (sans correction) entre 2 lits granulaires générés à partir de 2 random seeds différents (20 et 100) pour 2 profondeurs (1 cm et 10 cm) 70
Figure III-17 Comparaison des données de simulation d'efficacités fractionnelles initiales avec les résultats des expériences n°1 et n°2 73
Figure III-18 Comparaison des données de simulation d'efficacités fractionnelles initiales avec des résultats expérimentaux de filtration de fumées de métallisation (diamètre des collecteurs = 0,5 mm) 74
Figure III-19 Profils de perte de charge obtenus par les différents solveurs de l'équation de Stokes (Profondeur de lit granulaire : 1 cm, Vitesse superficielle : 19,89 cm/s) 75
Figure III-20 Comparaisons des valeurs de pertes de charge simulées et expérimentales 76
Figure III-21 Ecarts relatifs entre les simulations et les prédictions de la loi de Kozeny-Carman en fonction de ϕ 77
Figure III-22 Perte de charge simulée en fonction de la masse surfacique collectée pour différentes valeurs de f_{max} 79
Figure III-23 Perte de charge simulée en fonction de la masse surfacique collectée pour différentes valeurs σ_{max} 81
Figure III-24 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour deux valeurs de $n_{i,max}$ (10^4 et 10^5) 85
Figure III-25 Collecteur en coupe bidimensionnelle au niveau de son équateur et nombre de voxels le composant (Diamètre du collecteur = 1 mm, Taille des voxels = 5 µm) 86

Figure III-26 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour 2 valeurs du critère de convergence (10^{-4} et 10^{-3}) 87
Figure III-27 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour différents nombres d'injections par écoulement (4, 5, 10)..... 87
Figure III-28 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour différents nombres d'injections par écoulement (1, 2, 3)..... 88
Figure IV-1 Schéma de principe du milieu poreux modèle (d'après Payatakes et al., 1981)..... 95
Figure IV-2 Clichés des morphologies de dépôts à différents débits (indiqués avec le nombre de Péclet correspondant) pour des particules de 1,04 µm (Gauche) et 3,6 µm (Droite) (Kusaka et al., 2010)..... 96
Figure IV-3 Dépôts de particules simulés dans un tube à paroi parabolique (Gauche) et sinusoïdale (Droite) (Chang et al., 2008) 97
Figure IV-4 Dépôts de particules simulés avec réentrainement possible pour une vitesse superficielle de 0,2 cm/s (Gauche) et 0,1 cm/s (Droite) (Chang et al., 2008)..... 98
Figure IV-5 Photographie au microscope confocal à balayage laser d'un dépôt présentant des lobes latéraux liés au phénomène de rebond (issu de Kasper et al., 2010) 99
Figure IV-6 Relation schématique entre la structure d'un dépôt de particules et les conditions de filtrations en termes de paramètres adimensionnels (Pe = Nombre de Péclet, Stk = Nombre de Stokes, R = Paramètre d'interception) (d'après Kanaoka et al., 1986) 100
Figure IV-7 Illustration de la structure fractale des dépôts simulés de nanoparticules (Elmøe et al., 2009)..... 102
Figure IV-8 Vues du dessus (au-dessus) et en coupe latérale (en-dessous) de l'évolution du colmatage d'un capillaire droit (Elmøe et al., 2009) 103
Figure IV-9 Schéma du montage expérimental..... 104
Figure IV-10 Illustration du cadre amovible (jaune) contenant une ligne de collecteurs (rouge) et de son insertion dans le canal. 105
Figure IV-11 Illustration du cadre amovible adapté à une nappe de collecteurs et du système de bride 105
Figure IV-12 Distributions granulométriques des trois aérosols utilisés..... 106
Figure IV-13 Photographies du dispositif d'observation complet (Gauche) et du cadre rotatif sur son support (Droite)..... 107
Figure IV-14 Localisation des différentes zones d'observation sur la nappe de billes (Noir = x25 ; Bleu = x470) 108
Figure IV-15 Photographies des dépôts de nanoparticules de carbone à 4 (Gauche) et 8 heures (Droite) 108
Figure IV-16 (A) Image d'un collecteur de 1 mm de diamètre après un temps d'exposition de 3420 min (x250); (B) Image en niveau de gris d'un collecteur après un temps d'exposition de 3420 min (x470); (C) Image binarisée d'un collecteur après un temps d'exposition de 3420 min (x470); (D) Représentation d'un profil de dépôt en fonction de la position en surface d'un collecteur après un temps d'exposition de 3420 min 109
Figure IV-17 Epaisseur de dépôt sur un collecteur en fonction de l'angle (Gauche) et du temps d'exposition (Droite)..... 110
Figure IV-18 Evolution de la perte de charge de la nappe de billes en fonction de la masse surfacique générée pour les différents cycles de colmatage..... 111

Figure IV-19 Visualisation des dépôts de particules dans les neuf zones d'observations reparties sur toute la surface de la nappe (X470, Exp. n°=1) 112
Figure IV-20 Champ de vitesses locales dans un pore à deux vitesses superficielles différentes (5 cm/s et 20 cm/s)..... 113
Figure IV-21 Dépôt de nanoparticules de fer dans un pore formé par des billes magnétiques en arrangement carré pour une masse générée de 23,78 g/m^2 (A) et de 29,73 g/m^2 (B) (x470, Exp. n°=4,) 114
Figure IV-22 Représentations schématiques de la position des pôles de billes aimantées en arrangement carré 114
Figure IV-23 (A) Image couleur d'un pore en cours de colmatage; (B) Image en niveau de gris d'un pore en cours de colmatage; (C) Image binarisée d'un pore en cours de colmatage (x470, Exp. n°=3, 27,34 g/m^2 générés); (D) Image couleur d'un pore à l'état initial. 115
Figure IV-24 Degré moyen de fermeture des pores en fonction de la masse surfacique générée pour les expériences 1 à 5 116
Figure IV-25 Morphologie des dépôts pour un état de colmatage identique (γ = 90%) entre les expériences réalisées à 20 cm/s (n° 1 et 3) et 5 cm/s (n°=2) avec un aérosol de carbone..... 116
Figure IV-26 Dépôt de nanoparticules de carbone sur la quasi-totalité de la nappe entièrement colmaté (x25) pour les expériences n°=1 (Gauche, 20 cm/s) et n°=2 (Droite, 5 cm/s)..... 117
Figure IV-27 Evolution du ratio de fermeture moyen des pores en fonction de la masse surfacique générée d'un aérosol de fer (Exp. n°= 4)..... 117
Figure IV-28 Visuels de l'obstruction d'un pore par des nanoparticules de fer (A –E) et de carbone (F) pendant la phase initiale de colmatage 118
Figure IV-29 Perte de charge en fonction du degré de fermeture des pores 119
Figure IV-30 Représentations schématiques de la partie convergente d'un tube à étranglement (avec et sans dépôt)..... 120
Figure IV-31 Observation à faible grossissement d'un nappe de collecteur au premier ratio de fermeture égal à 1 en présence de pores momentanément débouchés (cercles rouges) (x25, Exp. n°=2) 121
Figure V-1 Représentation schématique d'un collecteur de référence avec son enveloppe de fluide selon un modèle à cellule..... 126
Figure V-2 Représentation schématique du milieu poreux de Neale et Nader 128
Figure V-3 Représentation schématique du calcul de l'efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne (Flux total en bleu, Flux collecté en rouge, Flux non-collecté en vert)..... 130
Figure V-4 Représentation schématique du concept de trajectoire limite (D'après Gutfinger et Tardos 1979)..... 132
Figure V-5 Représentation schématique d'un lit granulaire par le concept d'éléments unitaires et des différents modèles de collecteurs (Tien et Ramarao 2011)..... 138
Figure V-6 Représentation d'une cellule de Happel modifiée par une enveloppe de dépôt (zone grisée) autour d'un collecteur (Choo et Tien 1995a) 143
Figure V-7 Représentation schématique d'un dépôt formé en surface d'un collecteur au cours des phases A et B 149
Figure V-8 Facteur de transition, β*, en fonction de la masse volumique du matériau des particules et du rapport entre les perméabilités du lit granulaire et du dépôt..... 153
Figure V-9 Comparaison entre les prédictions du modèle de colmatage (efficacité et perte de charge) et les données expérimentales (1, 2, 3, 5, 6) 155

Figure V-10 Profils de dépôt pour différentes masses totales collectées (Expérience n°=4) 156
Figure V-11 Comparaison qualitative des allures de profils issus de la littérature (à gauche) (d'après Gitis et al. (2014)) et calculés théoriquement avec le modèle de colmatage (à droite)..... 157
Figure V-12 Mesures expérimentales de porosité de gâteaux de particules nanostructurées en fonction du nombre de Péclet et représentation de la relation 30 (D'après Thomas et al. (2014)) .. 158
Figure V-13 Comparaison des prédictions du modèle dans les conditions de l'expérience 2 pour différentes porosité de dépôt (de 90% à 98%) 158
Figure V-14 Comparaison des prédictions du modèle dans les conditions de l'expérience 2b pour différents diamètres de particules primaires (de 5 nm à 50 nm) 159
Figure V-15 Comparaison des prédictions du modèle dans les conditions de l'expérience 6 pour différents diamètres de particules primaires (de 1 nm à 3,5 nm) 160
Figure VI-1 Schéma de principe d'un MGBF à contre-courant(El-Hedok et al. 2011)..... 166
Figure VI-2 Evolution de l'efficacité et de la perte de charge d'un MGBF à contre-courant (Brown et al. 2003)..... 167
Figure VI-3 Schéma de l'architecture de base d'un MGBF à courants croisés (D'après Hsiau et al. 2004)..... 168
Figure VI-4 Exemple de MGBF à courants croisés : Inserts coniques (Gauche, D'après Chen et al. 2009), Inserts de type persiennes secondaires (Droite, D'après Hsiau et al. 2008) 169
Figure VI-5 Schéma de fonctionnement d'un panneau à lit filtrant..... 172
Figure VI-6 Evolution de la perte de charge au cours du temps : Deuxième couche seule – En-haut à gauche, Première couche seule – En-haut à droite, Lit granulaire bicouche – En bas (D'après Shi et al. (2015)) 174
Figure VI-7 Répartition de la masse collectée dans les trois couches des lits conventionnels (Gauche) et amélioré (Droite)..... 177
Figure VI-8 Evolution de l'efficacité (Gauche) et de la perte de charge (Droite) en fonction de la masse collectée des lits granulaires conventionnel et amélioré..... 178
Figure VI-9 Exemple graphique de la mise en œuvre de l'analyse multicritère..... 179
Figure VI-10 Domaine de Pareto du domaine avant analyse multicritère (455 combinaisons, En-haut) et après analyse multicritère (61 combinaisons, En-bas) 180
Figure VI-11 Exemple graphique d'application de la méthode des rough-sets aux combinaisons retenues par l'analyse multicritère 182
Figure VI-12 Combinaisons optimales de diamètres de collecteurs obtenues à partir des classements de 4 experts..... 183
Figure VI-13 Evolution de la fraction de la masse totale collectée dans les trois étages pour chaque configuration de lit granulaire étudiée : 1 mm/0,8 mm/ 0,5 mm (En-haut - Gauche) ; 0,6 mm/0,4 mm/0,2 mm (En- haut - Droite) ; 0,4 mm/0,3 mm/0,2 mm (En- bas - Gauche) ; 0,5 mm/0,5 mm/0,5 mm (En- bas - Droite) 184
Figure VI-14 Evolution prédite par le modèle de l'efficacité et de la perte de charge des lits granulaires conventionnel, améliorés et optimisés 185
Figure VI-15 Comparaison des évolutions de perte de charge et d'efficacité d'un L-GTO et de deux médias fibreux plans (C4MB21 et D309) pour deux vitesses superficielles (2,53 cm/s et 3,8 cm/s) . 186
Figure VI-16 Variation de la perte de charge d'un lit granulaire de laboratoire au fur et à mesure des cycles de colmatage/décolmatage (D'après Bémer et al. 2015)..... 188
Figure VI-17 Schéma de principe de la manche granulaire, représentations 3D extérieure et en coupe. 190

Figure VI-18 Evolution de la perte de charge lors d'un cycle de colmatage/décolmatage d'une manche granulaire 191
Figure VI-19 Comparaison des efficacités fractionnelles d'un lit granulaire composé de billes de PSE avec celles d'un lit équivalent en perte de charge composé de billes d'acier inoxydable..... 192

Table des tableaux

Tableau I-1 Exemple de procédés générant des PUF 11
Tableau I-2 Exemples d'applications des nanomatériaux dans différents secteurs d'activité (Ricaud et Witschger 2012) 15
Tableau I-3 Valeurs limites d'exposition aux aérosols pour différents matériaux en France 17
Tableau II-1 Conditions de génération des aérosols par le Palas GFG-1000 lors du colmatage des lits granulaires 34
Tableau II-2 Configurations expérimentales utilisées lors des colmatages de lits granulaires 39
Tableau II-3 Nombres adimensionnels correspondants aux expériences réalisées 40
Tableau II-4 Résultats de la validation du protocole expérimental par bilan de matière 41
Tableau III-1 Descriptifs des différentes étapes d'une simulation de filtration avec GeoDict® 55
Tableau III-2 Paramètres des essais de génération de RCP via la méthode « Pile and Compress » 58
Tableau III-3 Temps d'accès aux résultats à paramètres de simulation identiques pour les différents solveurs 62
Tableau III-4 Paramètres des expériences de performances initiales des lits granulaires vis-à-vis d'aérosols ultrafins 71
Tableau III-5 Paramètres des expériences utilisées pour la validation de GeoDict® à l'état initial vis-à-vis de particules nanostructurées non-sphériques 72
Tableau III-6 Comparaisons des efficacités initiales simulées et expérimentales vis-à-vis des nanoparticules de Zn-Al 74
Tableau III-7 Comparaison des résultats expérimentaux de perte de charge avec les données de simulation 75
Tableau III-8 Données de multiplicité pour deux nombres maximum de trajectoires calculées par classe granulométrique (10^4 en rouge, 10^5 en bleu) 84
Tableau III-9 Paramètre de simulation de l'expérience de colmatage n°2 90
Tableau IV-1 Conditions opératoires et protocoles de chaque expérience 111
Tableau V-1 Conditions opératoires des expériences de colmatage 152
Tableau VI-1 Caractéristiques individuelles des couches du lit granulaire bicouches utilisé par Shi et al. (2015) 174
Tableau VI-2 Propriétés de structure des médias fibreux utilisés 185

Introduction générale

Depuis le XIXème siècle et le début de l'ère industrielle, de nombreux progrès techniques ou découvertes ont permis le développement de produits toujours plus novateurs améliorant à la fois la capacité de production des procédés industriels et le quotidien des populations. Néanmoins, la distribution et l'utilisation à grande échelle de ces produits ont souvent été réalisées sans un recul suffisant quant à leur impact sur la santé et l'environnement. Ainsi au cours du XXème siècle, de nombreux scandales sanitaires ont été dévoilés. Ces problèmes de santé publique touchent par ailleurs un grand nombre de secteurs tels que le bâtiment, l'industrie pharmaceutique, l'agroalimentaire… L'une des affaires emblématiques touchant particulièrement la France est celle de l'amiante, un matériau présentant des propriétés remarquables en termes d'isolation thermique et électrique ainsi qu'en matière de résistance à la traction et à la corrosion. Du fait de ces propriétés, les produits contenant de l'amiante se sont répandus exposant ainsi aussi bien les travailleurs (surtout du secteur du bâtiment) que la population en générale. Ce matériau s'avérant hautement cancérigène à l'état de poussières pour les voies respiratoires et ayant été tardivement interdit (1997), il est responsable de 35 000 décès entre 1965 et 1995, et d'environ 100 000 d'ici à 2025. Depuis le début des années 1990, d'autres matériaux, appelés nanomatériaux, présentant encore une fois des propriétés « miraculeuses » ont été découverts, tels que les nanotubes de carbone (100 fois plus résistants et 6 fois plus légers que l'acier). De nos jours, ces nanomatériaux et plus spécifiquement leur forme particulaire apparaissent ainsi, à l'instar d'autres produits en leur temps, comme la solution à des verrous technologiques dans une multitude de domaine tels que le bâtiment (peintures et verres autonettoyants), la médecine (vecteurs de médicaments, imagerie médicale), la cosmétique (amélioration de la tenue du maquillage)… De ce fait, l'investissement pour développer de nouveaux produits incorporant des nanoparticules a fortement augmenté (de 900 millions d'euros jusqu'en 2005 à 1,5 milliards d'euros sur la seule période 2014-2016). Grâce à cet effort de recherche, le marché de ce type de produits a connu un essor particulièrement rapide (de 35 milliards de dollars en 2001 à 1000 milliards en 2015) et il existe ainsi, depuis quelques années maintenant, un grand nombre de produits de consommation courante contenant des nanoparticules. Pourtant, le développement de ces nouveaux produits a, encore une fois, précédé les études permettant de statuer sur leur impact sanitaire et ce malgré les fortes présomptions de toxicité émises par la communauté scientifique. Les nanoparticules contenues dans ces produits étant fabriquées volontairement afin d'en exploiter les propriétés liées à l'échelle nanométrique, ces dernières sont dites « manufacturées » par opposition aux particules ultrafines (PUF) produites naturellement (volcanisme…) ou non-intentionnellement par l'homme. Dans ce dernier cas, les PUF peuvent être générées en grande quantité par certains procédés industriels (projection thermique de métaux, combustion, soudage à l'arc…) ou encore par les moteurs thermiques (diesel…). Du fait de leurs dimensions nanométriques, les PUF sont susceptibles de représenter un risque pour la santé au même titre que les nanoparticules manufacturées. Devant le manque d'informations sur ces risques et le nombre toujours croissant de personnes potentiellement exposées (travailleurs, fabricants et consommateurs), il est apparu très tôt comme une nécessité de prendre des mesures de précaution afin de protéger les personnes et de prévenir une éventuelle vague de décès dans les décennies à venir comme ce fût le cas de l'amiante.

L'une des populations les plus exposées étant les travailleurs des entreprises utilisant des nanoparticules, la Commission européenne a préconisé dès 2004 que les risques liés à ce type de matériaux ne pouvaient pas être prédits ou déduits des propriétés à l'échelle macroscopique. Elle indiquait ainsi qu'un type de nanoparticule donné correspond à un agent chimique à part entière possédant sa propre valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP). Des démarches similaires ont par ailleurs été entamées dans d'autres pays tel que le Japon, les Etats-Unis ou le Canada. Cette prise de conscience globale du problème de santé publique que pourraient causer les émissions de nanoparticules dans l'air a, par ailleurs, poussé la Commission européenne à prendre des mesures afin de protéger l'ensemble de la population en réduisant la concentration en PM 2,5 (particules fines de moins de 2,5 µm de diamètre), et donc en PUF, dans l'atmosphère (directive européenne 2008/50/CE du 21 mai 2008). Le seuil de concentration fixé était de 25 µg/m^3 au 1er Janvier 2015 et sera au maximum de 20 µg/m^3 au 1er Janvier 2020.
Pour satisfaire l'objectif de protection des travailleurs, deux types de moyens de protection peuvent être mis en place, i.e., individuels (masque filtrant) ou collectifs (extraction de l'air vicié au plus proche de la source de pollution). Dans ce dernier cas, les deux objectifs de protection des travailleurs et du public sont intimement liés. En effet, si l'extraction de l'air contaminé permet de protéger les travailleurs dans les industries, il est nécessaire de filtrer cet air avant de le rejeter dans l'atmosphère pour protéger cette fois-ci les riverains et l'environnement. Parmi les industries les plus impactées par les contraintes techniques et financières que représente l'épuration de volume d'air important et très concentré en nanoparticules (de l'ordre de 100 mg/m^3), figurent les industries générant non-intentionnellement des particules ultrafines tels que celles ayant recours à des procédés de projection thermique de métaux et notamment la métallisation dont les débits à traiter sont classiquement de l'ordre de 10 000 à 20 000 m^3/h. Afin de respecter les normes de rejets fixées par décret pour ce type d'installation, les filtres doivent présentés une efficacité de collecte d'au moins 95%. Pour atteindre de telles efficacités, les filtres les plus utilisés en aval des procédés de métallisation sont les médias fibreux (à manches ou à cartouches). Ces filtres initialement très efficaces présentent l'inconvénient vis-à-vis des PUF constituant les fumées de métallisation d'être rapidement et irréversiblement colmatés. En effet, la très grande surface spécifique des nanoparticules augmentent fortement les forces d'adhésion entre elles et la surface du filtre en comparaison des particules microniques, rendant ainsi inopérant les techniques de décolmatages usuelles. De ce fait, les filtres doivent être fréquemment remplacés, engendrant par conséquent un surcout pour les industriels. Cette inefficacité du décolmatage vis-à-vis des PUF peut alors conduire à deux situations problématiques. En effet, certains industriels pourront être tentés de ne pas changer les filtres ou bien de les retirer purement et simplement, nuisant ainsi à la qualité de l'air intérieur (exposition des travailleurs) et extérieur (exposition des riverains), respectivement.
Pour pallier ce problème, un travail a été entrepris depuis plusieurs années dans un projet commun à l'Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS) et au Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP, UMR CNRS/UL 7274) afin de trouver des techniques de filtration alternatives ou complémentaires aux médias fibreux. Dans cette optique, cette étude s'intéresse dans le cadre de ce doctorat aux lits granulaires. En effet, bien qu'initialement moins efficaces et plus résistants à l'écoulement, les lits granulaires piègent dans la profondeur du média les particules et présentent ainsi une dynamique de colmatage différente des médias fibreux qui retiennent principalement les particules en surface. Ce colmatage dans la profondeur pourrait permettre notamment un décolmatage plus efficace sans interruption du procédé. De plus, une fois le lit granulaire totalement saturé en particules, il pourrait également être possible de laver les collecteurs, par exemple via un bain à ultrasons, afin de les réutiliser comme nouveaux médias filtrants. Cette capacité à restaurer la perte de charge en ligne et à être recyclés pourrait ainsi peut-être faire des lits granulaires une alternative économiquement viable aux techniques usuelles. Par ailleurs, du fait de la relative

abondance de matériaux granulaires résistants à la corrosion ou à des températures élevées, les lits granulaires représenteraient une solution aussi pour certaines industries traitant des aérosols particuliers susceptibles d'endommager les filtres à fibres classiques.

Pour répondre à cette problématique et déterminer si les lits granulaires peuvent effectivement représenter une alternative crédible aux médias fibreux, il a été décidé de procéder en plusieurs étapes décrites dans chacun des chapitres de ce manuscrit. Ainsi, dans le **chapitre 1** la terminologie et le contexte spécifique à ce travail seront présentés de façon détaillée. Une fois les concepts de bases définis, le **chapitre 2** présentera une étude expérimentale du colmatage de lits granulaires par des PUF, réalisée dans des conditions expérimentales variées, afin d'en étudier les principales spécificités. Evaluer la capacité des lits granulaires à se positionner en tant qu'alternative aux médias fibreux pour la filtration des PUF peut nécessiter la connaissance des performances des lits granulaires dans un grand nombre de situations (vitesse d'écoulement, diamètre des collecteurs, nature des particules…). La réalisation des expériences correspondantes étant fastidieuse voire prohibitive en matière de temps, il a été décidé de trouver un outil permettant de prédire le colmatage des lits granulaires. Les deux moyens envisagés pour y parvenir sont l'utilisation de la simulation numérique avec GeoDict®, un code de calcul spécialement dédié aux milieux poreux, ainsi que le développement d'un modèle théorique. Les résultats des travaux de simulations seront décrits au **chapitre 3** de cet ouvrage. Afin de développer le modèle théorique, une étude expérimentale supplémentaire a été réalisée afin de mieux appréhender la géométrie des dépôts de PUF en surface de collecteurs sphériques ainsi que dans les pores d'un lit granulaire. Les résultats de cette étude de la morphologie des dépôts seront présentés au **chapitre 4**. Le développement du modèle théorique de colmatage sera, quant à lui, détaillé au **chapitre 5**. Le **chapitre 6** sera finalement consacré à la présentation d'une démarche d'optimisation multicritère du procédé se basant en partie sur l'utilisation du modèle théorique de colmatage et ayant notamment pour but d'étendre la durée de fonctionnement entre deux opérations de décolmatages. Les travaux de ce dernier chapitre devront notamment permettre, lors d'une **conclusion générale,** d'apporter des éléments de réponses quant à l'applicabilité des lits granulaires à la filtration des fumées de métallisation ainsi que de définir les principales orientations futures à donner à ces travaux.

I. Contexte général

I.1 Préambule terminologique

Les particules ultrafines (PUF) représentent un type de nanomatériau et appartiennent donc au nanomonde dans lequel l'unité caractérisant l'espace est le nanomètre, de l'ordre de 1/50000ème de l'épaisseur d'un cheveu humain (Figure I-1).

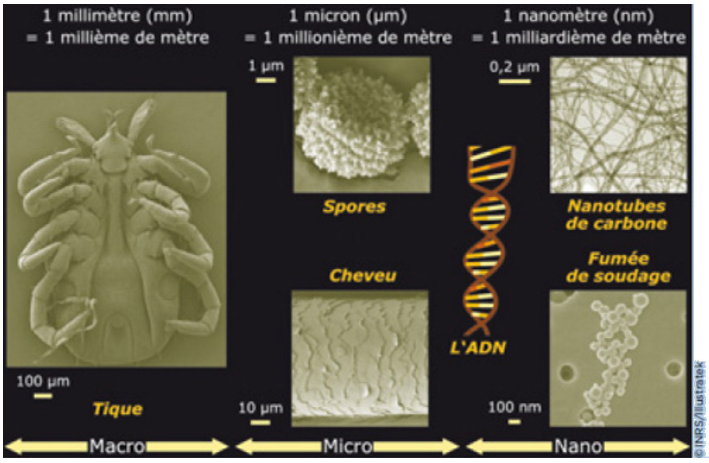


Figure I-1 Echelle des dimensions (D'après Ricaud et Witschger 2012)

Le terme de particules ultrafines caractérise des nanomatériaux dont la production peut être naturelle (par exemple le volcanisme) ou non-intentionnelle dans le cadre de certains procédés industriels. Les principaux procédés générant indirectement ce type de particules sont décrits dans le Tableau I-1:

Tableau I-1 Exemple de procédés générant des PUF

Familles de procédés	Exemple de procédés émettant des PUF
Thermiques	Métallisation, Soudage à l'arc, Découpe de métaux…
Combustions	Moteurs (Diesel), Incinérateur, Chauffage au gaz, Fumage des aliments…
Mécaniques	Usinage, Ponçage, Perçage, Polissage…

Les PUF ne diffèrent ainsi des nanomatériaux manufacturés que par le fait que ces derniers sont générés intentionnellement par l'homme en vue d'une utilisation bien précise nécessitant des propriétés spécifiques ne pouvant être obtenues qu'à l'échelle nanométrique d'un matériau (Ricaud et Witschger 2012).

Les nanomatériaux représentent la catégorie la plus générique de structures au sein du nanomonde et il en existe différentes définitions. D'après la Commission européenne, depuis 2011, dans le cadre d'une recommandation, le nanomatériau est défini comme un matériau naturel, formé accidentellement ou manufacturé contenant des particules libres, sous la forme d'agrégats ou d'agglomérats, dont au moins 50% des particules, dans la répartition numérique par taille, présentent une ou plusieurs dimensions externes se situant entre 1 et 100 nm. Dans des cas spécifiques, lorsque cela se justifie pour des raisons de protection de l'environnement, de santé publique, de sécurité ou de compétitivité, ce seuil de 50% peut être revu à la baisse jusqu'à 1%. Par ailleurs, d'après la Commission européenne, tout matériau ayant une surface spécifique de plus de 60 m^2/cm^3 est aussi considéré comme un nanomatériau (Reynier 2013).

Contexte général

Certains objets comme les nanotubes de carbone pouvant avoir une ou plusieurs dimensions inférieures à 1 nm rentrent également dans cette définition. Par ailleurs, la norme ISO TS 80004-1 définit un nanomatériau comme un matériau dont au moins une dimension externe est comprise entre 1 et 100 nm ou qui possède une structure volumique ou de surface à l'échelle nanométrique (entre 1 et 100 nm).
Au sein des nanomatériaux, on dénombre deux grandes familles. La première concerne les nano-objets qui sont des matériaux dont une, deux, ou trois dimensions externes sont à l'échelle nanométrique.

- Les nanoparticules : nano-objets dont les trois dimensions sont comprises entre 1 nm et 100nm,
- Les nanofibres, nanotubes, nanofilaments ou nanobatonnêts : nano-objets dont deux dimensions externes sont comprises entre 1 nm et 100 nm et la troisième significativement supérieure,
- Les nanofeuillets, nanoplats ou nanoplaquettes : nano-objets dont une seule dimension externe est à l'échelle nanométrique et les deux autres dimensions sont significativement supérieures.

La deuxième famille de nanomatériaux regroupe les matériaux dits nanostructurés. Ces matériaux possèdent une structure volumique (exemple : pores) ou surfacique (exemple : rugosité) comprise, entre 1 et 100 nm. Parmi ce type de nanomatériaux, on distingue trois catégories :

- Les agrégats ou agglomérats de nano-objets se différenciant par une fusion totale ou partielle de ces derniers, respectivement,
- Les nanocomposites : matériaux composés pour tout ou partie de nano-objets qui leur confèrent des propriétés améliorées spécifiques de l'échelle nanométrique,
- Les matériaux nanoporeux : matériaux possédant des pores de taille nanométrique.

Les PUF utilisées dans cette étude étant, au sens de cette norme, des agglomérats de nanoparticules (particules primaires), leur dénomination rigoureuse la plus précise devrait être particules nanostructurées[1]. Par définition, ces particules peuvent présenter des formes diverses et variées qui ne permettent pas, comme dans le cas d'une sphère, de leur attribuer un réel diamètre. Pour pallier ce problème, elles peuvent être décrites par différents diamètres équivalents définis comme le diamètre d'une sphère ayant une propriété physique ou un comportement spécifique identique à celui ou celle de la particule réelle. On trouve ainsi différents diamètres équivalents :

- **Diamètre de Stokes :** Le diamètre de Stokes est le diamètre d'une sphère qui a la même vitesse de sédimentation et la même masse volumique que la particule considérée,
- **Diamètre équivalent en volume :** Le diamètre équivalent en volume est défini comme le diamètre d'une sphère qui contient le même volume de matière que la particule considérée,
- **Diamètre aérodynamique :** Le diamètre aérodynamique est le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de sédimentation que la particule considérée et une masse volumique égale à 1 g/cm^3,

[1] Le terme de nanoparticule est souvent employé dans la littérature pour décrire les particules nanostructurées dont les trois dimensions ne sont pas obligatoirement toutes à l'échelle nanométrique (Gaffet 2009). Pour des raisons de simplicité, les particules utilisées pourront donc être appelées indifféremment particules ultrafines, particules nanostructurées ou nanoparticules au-delà du présent chapitre.

- **Diamètre de mobilité électrique :** En présence d'ions dans l'air, les particules constituant un aérosol acquièrent des charges et la force électrostatique agissant sur ces particules peut dans certains cas être cent fois plus importante que la force de gravité (Bau 2008). Ainsi en présence d'un champ électrique, une particule acquièrt une vitesse de déplacement et une mobilité électrique exprimée comme le rapport entre cette vitesse et la valeur du champ électrique. Le diamètre de mobilité électrique d'une particule est donc défini comme le diamètre d'une sphère ayant la même mobilité électrique que la particule considérée.

I.2 Les nanomatériaux dans le monde moderne

Les particules ultrafines représentent d'après ce préambule terminologique un type de nanomatériaux produits non-intentionnellement. Bien que ce type de nanomatériaux soit à lui seul généré en très grande quantité par certains procédés industriels, il s'inscrit dans un ensemble encore bien plus vaste. En effet, les nanomatériaux, qu'ils soient manufacturés ou non prennent une place chaque jour de plus en plus importante dans notre environnement. Un bref descriptif de cette évolution est fourni dans la suite de cette partie afin de mieux comprendre la place de ces matériaux dans notre environnement quotidien.

I.2.1 Un peu d'histoire

Le point de départ de cette révolution nanoscopique peut être positionné en 1959 avec le discours visionnaire de Richard Feynman « There's plenty of room at the bottom » (i.e., il y a plein de place au bas de l'échelle). Dans son discours, Feynman incite la communauté scientifique à explorer l'infiniment petit en suggérant, déjà à l'époque, que l'homme découvrira des propriétés énormément plus étendues de la matière dès lors qu'il développera sa capacité de contrôle sur l'arrangement des atomes à une très faible échelle. Ce discours pose les fondements conceptuels des nanotechnologies définies aujourd'hui comme un ensemble d'outils, d'instruments et de techniques offrant des moyens d'étudier, manipuler, fabriquer et mesurer les objets nanométriques. Ces derniers à l'instar des nanomatériaux de tout type font aussi partie du domaine des nanotechnologies (« Nanoscience and Nanotechnologies: Opportunities and Uncertainties » 2004). Grâce aux progrès technologiques, cette vision est devenue réalité avec le développement de nanomatériaux aux propriétés physico-chimiques nouvelles, comme les nanotubes de carbone : 100 fois plus résistants et 6 fois plus légers que l'acier (Ricaud et Witschger 2012). Ces changements de propriétés dus au passage à l'échelle nanométrique concernent tous les types de matériaux ainsi que l'ensemble des propriétés physico-chimiques : optique, mécanique, chimique, électrique, magnétique etc… Devant les bonds technologiques que cela pourrait représenter, l'investissement public ou privé en recherche et développement sur les nanotechnologies s'est littéralement envolé lors des deux dernières décennies. A titre d'exemple, d'après les données de la Commission européenne, l'investissement dans l'Union Européenne sur les nanotechnologies est passé d'un total de 900 Millions d'euros jusqu'en 2005 à déjà 1,5 Milliards d'euros sur la seule période 2014-2016. Cet effort de recherche se traduit par une augmentation du nombre d'articles publiés sur les nanotechnologies (Figure I-2). Ces données sont issues du site www.Statnano.com qui compile les statistiques de publications indexées par l'Institute for Scientific Information (ISI) sur Web of Science (WoS).

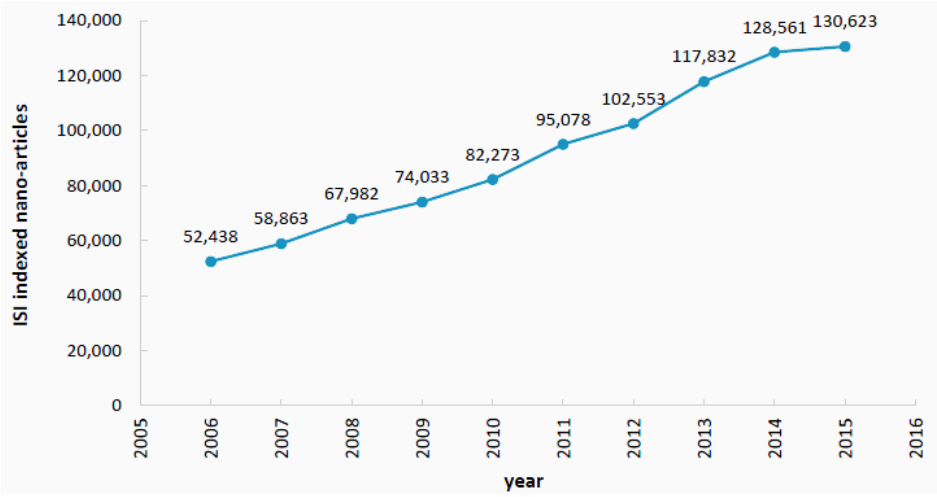


Figure I-2 Nombre d'articles cumulé sur les nanotechnologies entre 2006 et 2015 (« StatNano Annual Report 2015 » 2016)

D'après la même base de données, il apparait que la majorité des articles concernait les nanoparticules et que cette tendance s'est accentuée depuis 2004 (« Which nanomaterials have been studied more? » 2014). Cette surreprésentation peut être aussi expliquée par le fait que le terme nanoparticule est souvent employé par abus de langage pour décrire plus généralement d'autres types de nanomatériaux à l'état particulaire (particules ultrafines ou particules nanostructurées).

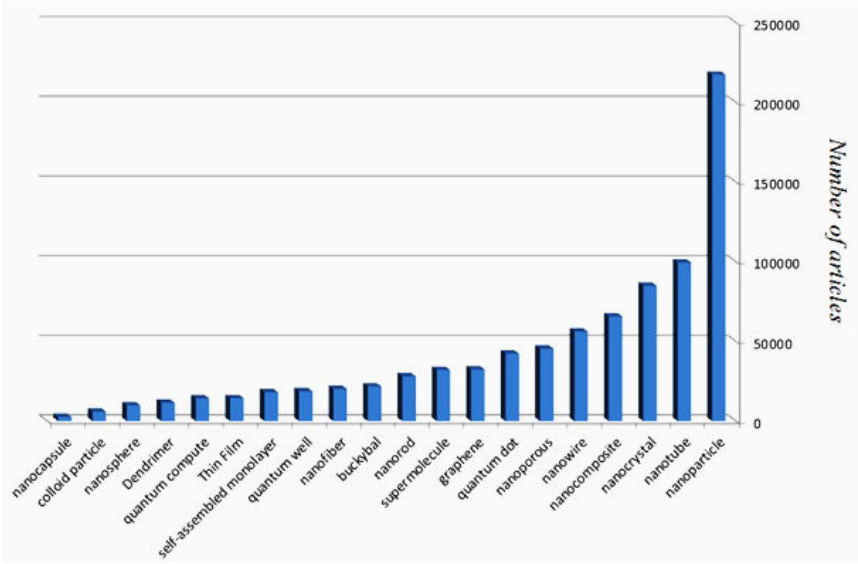


Figure I-3 Nombre d'articles publiés sur différents nanomatériaux entre 2004 et 2013
(« Which nanomaterials have been studied more? » 2014)

I.2.2 Domaines d'application des nanomatériaux

Grâce à cet effort d'investissement dans la R&D, les nanotechnologies et spécialement les nanomatériaux sont passés d'une phase de développement à une phase d'industrialisation concernant la majorité des secteurs d'activité. Le chiffre d'affaire de ce marché mondial des nanotechnologies qui pesait environ 35 milliards de dollars en 2001 représentait ainsi en 2015 environ 1000 milliards de dollars. Des exemples d'application des nanomatériaux dans les principaux secteurs industriels sont présentés dans le Tableau I-2.

Tableau I-2 Exemples d'applications des nanomatériaux dans différents secteurs d'activité (Ricaud et Witschger 2012)

Secteur d'activité	Applications possibles
Automobile, Aéronautique, Aérospatial	Matériaux plus résistants et plus légers, nouveaux effets de couleurs, traitements anticorrosion et anti-rayures, amélioration de la combustion du diesel grâce à un additif, augmentation de la durée de vie des pneus …
Electronique, Communications	Miniaturisation des processeurs, augmentation des capacités de stockage et de la rapidité des appareils électroniques, écrans plats…
Agroalimentaire	Marqueur de la fraicheur des aliments, Nouveaux colorants, émulsifiants…
Chimie, Matériaux	Catalyseurs multifonctionnels, revêtements antibactériens et plus résistants…
Construction	Ciments et vitrages autonettoyants, nouvelles colles, nouveaux mastics…
Santé	Vecteurs médicamenteux ne ciblant que des organes précis, Imagerie médicale…
Cosmétique	Crèmes solaires transparentes, dentifrices abrasifs, amélioration de la tenue du maquillage…
Energie	Amélioration des performances des cellules photovoltaïques, des batteries, de l'isolation…
Ecologie	Diminution des émissions de CO_2, pesticides et fertilisants écoresponsables…
Défense	Détecteurs d'agents chimiques et biologiques ; miniaturisation des systèmes de surveillances…

Le site « Statnano » propose depuis début 2016 une base de données des nanomatériaux utilisés dans les produits finis, au sens de la norme ISO TS 80004-1 décrite précédemment. Il apparait ainsi dans une liste non-exhaustive, qu'au moins 6174 produits fabriqués par 844 entreprises à travers 47 pays dans le monde contiennent des nanomatériaux, dont 29% de seules nanoparticules. Cette prépondérance des nanoparticules dans les produits est par ailleurs en accord avec celle des nanoparticules dans les articles de recherche (Figure I-3).
D'après ces statistiques, il existe ainsi, depuis plus d'une décennie maintenant, un grand nombre de produits de consommation courante aux propriétés « miraculeuses » contenant des nanomatériaux à l'état particulaire. Pourtant, le développement de ces nouveaux produits a précédé les études permettant d'avoir un recul suffisant pour évaluer de façon certaine leur impact sur la santé et sur l'environnement et ce malgré les doutes de la communauté scientifique. Devant ce manque d'informations et le nombre de personnes potentiellement exposées (travailleurs, fabricants et consommateurs), les études de toxicité des nanomatériaux en général se sont multipliées ces dernières années et concernent donc à la fois, les nanomatériaux manufacturés et les PUF générées non-intentionnellement par les procédés cités dans le Tableau I-1.

I.3 Effets sur la santé

Il existe trois voies potentielles de pénétration des nanomatériaux dans le corps humain : l'inhalation, l'ingestion et le contact cutané, la voie respiratoire étant la voie majeure (Ricaud et Witschger 2012). Une fraction des nanomatériaux mis en suspension dans l'air (aérosol) peut ainsi être inspirée puis déposée dans l'arbre respiratoire ou bien rejetée lors de l'expiration. L'un des principaux risques potentiels lié à l'inhalation des objets nanométriques est qu'en fonction de leur taille, ils peuvent être amenés à se déposer profondément dans les poumons. Comme le montre la Figure I-4, les objets dont le diamètre est compris entre 10 nm et 100 nm pénètrent majoritairement jusqu'aux alvéoles pulmonaires.

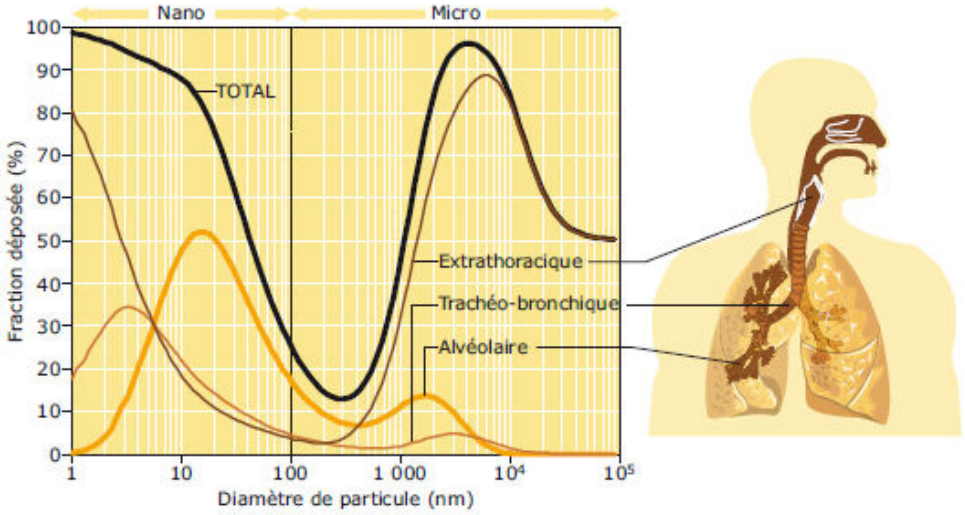


Figure I-4 Probabilité de dépôt d'un aérosol dans l'arbre pulmonaire en fonction de sa taille et du mode de respiration (Ricaud et Witschger 2012)

Les différences de forme, de surface spécifique, de charge, de propriétés chimiques, de solubilité ou encore de potentiel oxydant des nanomatériaux en comparaison des matériaux bruts macroscopiques peuvent influencer leur toxicité une fois dans le corps humain. Les effets toxicologiques induits par les nanomatériaux dans le corps humain reposent souvent sur des mécanismes d'inflammation et de stress oxydatif. Le stress oxydatif est à la base de la formation de radicaux libres très réactifs pouvant altérer les tissus biologiques environnants si les défenses anti-oxydantes du corps humain ne parviennent pas à les inactiver. Dans le cas des inflammations, elles doivent se résorber spontanément. Si tel n'est pas le cas, elles peuvent entrainer des dysfonctionnements de l'organe concerné et se répandre à d'autres par l'intermédiaire de la sécrétion de médiateurs (« Nanotechnologies, Nanomatériaux, Nanoparticules - Quels impacts sur l'homme et l'environnement ? » 2007). Ces effets toxiques par réactions inflammatoires prolifératives ont été confirmées vis-à-vis des nanoparticules de dioxyde de titane par le National Institut for Occupational Health and Safety (NIOSH) (Chazelet et al. 2016). Il a également pu être démontré qu'à masse égale, la réponse biologique à une exposition par inhalation à des nanoparticules peu ou pas solubles est souvent plus forte que pour le même matériau de taille micrométrique. En effet, il semblerait qu'à l'échelle nanométrique les dommages ainsi que les tumeurs pulmonaires soient accentués (Ostiguy et al. 2010). De plus, les dégâts potentiellement engendrés par l'inhalation de nanomatériaux ne pourraient pas être uniquement localisés au niveau du système respiratoire. En effet, il est maintenant de plus en plus reconnu que les nanomatériaux sont capables de franchir certaines barrières biologiques, notamment alvéolaire, et de migrer dans le corps humain par le sang ou la lymphe pour atteindre d'autres organes. Les alvéoles ne sont cependant pas les seuls points de passage dans l'arbre respiratoire. Les nanomatériaux inhalés peuvent également passer outre la muqueuse nasale et être transportés par les nerfs olfactifs et crâniens jusqu'au système nerveux central (Gwinn et Vallyathan 2006).

I.4 Stratégies de protection respiratoire contre les nanomatériaux

Du fait du nombre toujours croissant de personnes exposées aux aérosols de nanomatériaux, qu'ils soient manufacturés ou non, ainsi que de leur toxicité de plus en plus avérée vis-à-vis de l'homme, il est apparu très tôt comme une nécessité de prendre des mesures de précaution afin de protéger les personnes et l'environnement. L'une des populations les plus exposées étant les travailleurs des

entreprises utilisant intentionnellement ou non des nanomatériaux, la Commission européenne a préconisé dès 2004 que les risques liés à ce type de matériaux ne pouvaient pas être prédits ou déduits des propriétés à l'échelle macroscopique. Elle indiquait ainsi qu'un nanomatériau donné correspond à un agent chimique à part entière impliquant qu'une valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP) devrait être déterminée pour chacun d'eux. Malheureusement, très peu de VLEP spécifiques aux nanomatériaux ont été effectivement définies. Au niveau français ou international, on trouve toutefois certaines valeurs limites indicatives ou contraignantes d'exposition pour des aérosols de quelques grandes familles de matériaux. Si ces valeurs ne sont pas spécifiques aux nanomatériaux, elles incorporent tout de même parfois une notion de taille des particules. Cette distinction est effectuée en termes de capacité des particules à pénétrer plus ou moins profondément dans les différentes zones de l'arbre respiratoire. Ainsi, on distingue les fractions alvéolaire, thoracique ou inhalable (totale pénétrant les voies respiratoires) (Courtois et Cadou 2012). Pour les définitions précises de ces différentes fractions, le lecteur peut se référer à la norme NF EN 481 (« NF EN 481 - Atmosphères des lieux de travail - Définition des fractions de taille pour le mesurage des particules en suspension dans l'air » 2016). La majorité de ces valeurs est par ailleurs définie sur la base d'une concentration moyenne maximale dans l'air à ne pas dépasser durant une journée de travail impliquant 8 heures d'exposition. Les principales valeurs limites d'exposition aux aérosols définies d'après ce système en France ou d'après des directives européennes sont récapitulées dans le Tableau I-3. Ces valeurs font la distinction entre différents types d'aérosols, notamment entre les poussières et les fumées. Les poussières sont définies comme des dispersions de particules solides dans l'atmosphère, formées par un procédé mécanique ou par la remise en suspension depuis un lieu de dépôt. Les fumées sont quant à elles définies comme des dispersions de particules solides, très fines, engendrées soit par des procédés thermiques, soit par condensation depuis la phase gazeuse, soit par combustion incomplète.

Tableau I-3 Valeurs limites d'exposition aux aérosols pour différents matériaux en France

Produits	Valeurs limites d'exposition (mg/m^3)	Commentaires
Poussières dites sans effets spécifiques	• 10 (fraction inhalable) • 5 (fraction alvéolaire)	Poussières qui ne sont pas en mesure de provoquer seules sur les organes d'autres effets que celui de surcharge. Démarche en France pour abaisser la VLEP alvéolaire à 2 mg/m^3.
Graphite	• 2 (fraction alvéolaire)	Non-fibreux
Noir de carbone	• 3,5 (fraction alvéolaire)	-
Vanadium	• 0,05 (fraction inhalable)	Poussières ou fumées
Silice cristalline	• 0,05 à 0,1 (fraction alvéolaire)	Dépend du type de silice
Bois	• 1 (fraction inhalable)	-
Cuivre	• 1 / 0,2 (fraction inhalable)	Poussières et fumées
Aluminium	• 5 (fraction inhalable)	Fumées
Magnésium	• 10 (fraction inhalable)	Fumées d'oxyde de magnésium
Manganèse	• 10 (fraction inhalable)	-
Zinc	• 1 / 5 (fraction inhalable)	Fumées de chlorure/oxyde de zinc
Fer	• 5 (fraction inhalable)	Fumées de Fe_2O_3
Dioxyde de titane	• 10 (fraction inhalable)	-
Molybdène	• 5 (fraction inhalable)	Composé soluble, pouvant se retrouver à l'état de fumées

Contexte général

Concernant ces VLEP non-spécifiques aux nanomatériaux, les valeurs dans les différents pays du monde sont souvent voisines ou identiques car les préconisations américaines de l' « American Conference of Governmental Industrial Hygienists » (ACGIH) servent en général de références. Une base de données de ces différentes VLEP (2050 matériaux) dans 29 pays est tenue à jour par L'IFA (Institut für Arbeitsschutz) en Allemagne (GESTIS International Limit Values).
Concernant spécifiquement les nanomatériaux, il n'existe aujourd'hui aucune VLEP définie en France. Dans d'autres pays en revanche, des VLEP spécifiques à l'inhalation de nanomatériaux commencent à apparaître (Chazelet et al. 2016). Quelques exemples sont donnés ci-dessous :
Aux Etats-Unis, le NIOSH a proposé en 2011 des VLEP vis-à-vis de quelques nanomatériaux. Ces VLEP sont basées sur une exposition respiratoire de 10 heures par jour et 40 heures par semaine et varient en fonction de la granulométrie des nano-objets primaires composant les nanomatériaux. Ainsi pour le dioxyde de titane (TiO_2), les valeurs suivantes ont été préconisées :

- 2,4 mg/m^3 pour le TiO_2 dit « fin » (fraction alvéolaire, nano-objets primaires de taille supérieure à 100 nm ainsi que leurs agrégats et agglomérats).
- 0,3 mg/m^3 pour le TiO_2 dit « ultrafin » (fraction alvéolaire, nano-objets primaires de taille inférieure à 100 nm, ainsi que leurs agrégats et agglomérats).

Au Japon, le NEDO (New Energy and Industrial Technology Development Organization) préconise une VLEP de 0,6 mg/m^3 pour le TiO_2 ultrafin.
Au Royaume-Uni, le BSI (British Standard Institution) propose depuis 2007 des VLEP pour les nanomatériaux peu ou pas solubles. Ces VLEP sont égales à celles des matériaux micrométriques pondérées d'un facteur de sécurité de 0,066. Ce facteur de sécurité correspond au rapport des VLEP obtenues par le NIOSH pour le TiO_2 ultrafin et fin lors de travaux initiaux en 2005. Ces valeurs ont par la suite été relevées pour aboutir à celles décrites précédemment et donc à un nouveau facteur de sécurité de 0,125.

En Allemagne, le BAuA (Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin) établit de manière générale la VLEP à 3 mg/m^3 pour la fraction alvéolaire des poussières sans effets spécifiques, ce qui est sensiblement plus faible que la valeur française donnée dans le Tableau I-3. L'IFA a, quant à lui, fourni des VLEP selon la masse volumique des nanomatériaux. Ces VLEP sont exprimées en utilisant une métrique en nombre et non en masse comme c'est le cas pour celles citées précédemment (Schulte et al. 2010) :

- 20000 particules/cm^3 pour les nanomatériaux granulaires biopersistants dont la masse volumique est supérieure à 6000 kg/m^3.
- 40000 particules/cm^3 pour les nanomatériaux granulaires biopersistants dont la masse volumique est inférieure à 6000 kg/m^3.
- 0,01 fibres ou tubes /cm^3 pour les nanotubes de carbone. Cette limite est souvent exprimée en nombre de fibres car elle a été fixée sur la base de la VLEP de l'amiante.
- 0,1 mg/m^3 pour les PUF d'oxyde de zinc.

Devant cette prise de conscience globale du problème de santé publique que pourraient représenter les aérosols de nanomatériaux, l'Union Européenne a décidé également de prendre des mesures afin de protéger la population extérieure et l'environnement en améliorant la qualité de l'air et notamment en réduisant la concentration en particules ultrafines de l'atmosphère. Ceci implique ainsi la réduction des émissions de particules ultrafines par les activités anthropiques responsables de cette pollution. Cette stratégie communautaire d'amélioration de la qualité de l'air se base sur la directive européenne (2008/50/CE) du 21 mai 2008.

Dans cette directive, les particules ultrafines sont groupées au sein d'une catégorie, PM 2,5, qui désigne les particules de diamètre inférieur à 2,5 µm. Le constat servant de base au développement de cette norme concernant les PM 2,5 correspond à la situation actuelle vis-à-vis des aérosols de nanomatériaux. En effet, l'Union Européenne a statué sur le fait que les incidences négatives de ce type de particules sur la santé humaine sont à l'évidence importantes mais qu'aucun seuil au-dessous duquel les PM 2,5 seraient inoffensives n'est à l'heure actuelle connu. Par conséquent, les instances européennes ont considéré, comme pour la problématique de l'exposition professionnelle, que cette pollution ne devrait pas être réglementée de la même manière que des particules plus grossières. Similairement aux VLEP décrites précédemment, des valeurs limites ont donc été mises en place au nom du principe de précaution. La concentration en PM 2,5 devait ainsi être obligatoirement inférieure à 25 µg/m^3 au 1er Janvier 2015 et devra être au maximum de 20 µg/m^3 au 1er Janvier 2020. On note par ailleurs que la valeur recommandée par l'Organisation Mondiale de la Santé est de 10 µg/m^3.

Pour satisfaire l'objectif de protection des travailleurs, deux types de moyens de protection peuvent être mis en place, i.e., individuels (masque filtrant) ou collectifs (extraction de l'air vicié au plus proche de la source de pollution). Dans ce dernier cas, les deux objectifs de protection des travailleurs et du public sont intimement liés. En effet, si l'extraction de l'air contaminé permet de protéger les travailleurs dans les industries produisant tout type de nanomatériaux, il est nécessaire de filtrer cet air avant de le rejeter dans l'atmosphère pour protéger cette fois-ci les riverains et l'environnement. Parmi les industries les plus impactées par les contraintes techniques et financières que représente l'épuration de volume d'air important et très concentré en nanomatériaux, figurent les industries générant non-intentionnellement des particules ultrafines du fait de l'utilisation de procédés thermiques, mécaniques ou de combustion (Tableau I-1). Cette étude se focalise sur les procédés de projection thermique de métaux comme la métallisation dont les débits à traiter sont classiquement de l'ordre de 10 000 à 20 000 m^3/h.

I.5 Epuration des rejets industriels de particules ultrafines métalliques

Pour des fumées de métallisation contenant du Zinc, la concentration maximale des rejets industriels est fixée par décret à 5 mg/m^3 pour des installations rejetant plus de 25 kg/h de particules. La concentration de ce type de fumées générées par des procédés de projection thermique à arc électrique étant d'environ 100 mg/m^3 (Bémer et al. 2013), les industriels doivent mettre en place des systèmes d'épuration présentant une efficacité d'au moins 95%. Pour une telle application, il existe différents moyens de filtration permettant de satisfaire les obligations légales et les plus courants sont décrits dans cette section.

I.5.1 Les électrofiltres ou précipitateurs électrostatiques

Le principe des électrofiltres, appelés aussi précipitateurs électrostatiques (PES), est d'utiliser les interactions électrostatiques afin de dévier les particules chargées de leur trajectoire lors de la traversée d'un fort champ électrique créé entre deux électrodes. Les électrodes collectrices sont souvent des plaques. Les particules en mouvement dans l'air présentent cependant une charge électrique souvent faible qu'il est nécessaire de doper artificiellement afin d'augmenter les performances des PES. Lors de leur passage au travers de l'électrofiltre (Figure I-5), les particules sont ainsi chargées par collision avec les ions du gaz porteur obtenus par effet couronne sous l'action d'une forte tension électrique négative de plusieurs dizaines de kilovolts. Afin de maintenir les performances des PES en termes d'efficacité de collecte, il est nécessaire de nettoyer périodiquement les électrodes collectrices.

Ce décolmatage peut se faire par vibration, frappage ou lavage. Si la fréquence d'entretien des PES est respectée, ce type d'épurateur permet d'atteindre de très bonnes efficacités de collecte indépendamment de la taille des particules tout en maintenant une résistance à l'écoulement quasi-constante.

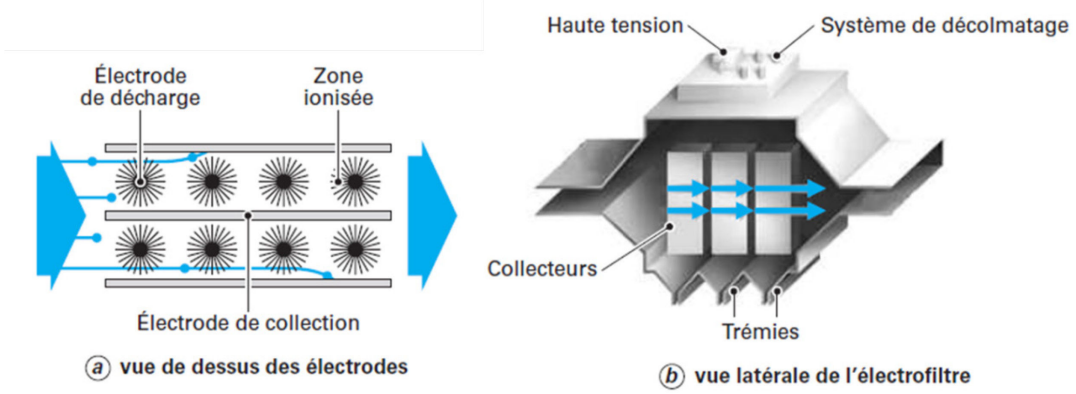


Figure I-5 Schéma de principe d'un électrofiltre (d'après Le Coq 2016)

Des technologies d'électrofiltre plus élaborées ont été mises au point afin de s'affranchir par exemple de l'arrêt du procédé pour laver les électrodes. Dans ce cas, les électrodes collectrices sont recouvertes d'un film tombant d'un certain type de liquide (en fonction de leur conductivité électrique) ne nuisant pas à l'intensité de la charge des particules par effet couronne (Peukert et Wadenpohl 2001). Pour ce dernier type de PES, Peukert et Wadenpohl ont obtenu expérimentalement des efficacités initiales de collecte allant de 70% à plus de 99 % pour des nanoparticules de 30 nm de diamètre. Ces différentes efficacités ont été obtenues en faisant varier la surface spécifique de collecte qui constitue le paramètre prépondérant pour le dimensionnement de ce type d'épurateur.

Bien que les électrofiltres possèdent des avantages indéniables en matière d'efficacité de collecte et de résistance à l'écoulement, leur gamme de fonctionnement optimale est fonction de la résistivité électrique des particules, de 10^7 à 10^{10} Ω.cm, paramètre déterminant pour la qualité de la charge des particules. Dans le cas où la résistivité est élevée (supérieure à 10^{10} Ω.cm), la chute de potentiel au travers de la couche de particules collectées en surface des électrodes peut devenir trop importante et causer plusieurs phénomènes nuisant aux performances de l'électrofiltre. Tout d'abord, cela peut conduire à une réduction de la différence de potentiel entre les électrodes et ainsi réduire fortement l'intensité du champ électrique responsable de la migration des particules chargées vers les plaques collectrices. Un autre phénomène lié à une trop forte résistivité est appelé effet couronne inverse. Cet effet inverse se produit lorsque la chute de potentiel au travers de la couche de dépôt est si importante qu'un effet couronne commence à apparaitre au niveau du gaz piégé dans la couche de dépôt. Ces décharges couronnes inverses produisent des ions positifs au niveau des électrodes collectrices qui vont ensuite rejoindre le flux d'air en direction des électrodes chargées négativement. Ce déplacement d'ions entraine des collisions avec les particules libres qui vont présenter une charge négative globale moins importante et donc être moins déviées par le champ électrique en direction des électrodes collectrices. Dans le cas où la résistivité des particules est faible à très faible (inférieure à 10^7 Ω.cm), ces dernières deviennent de plus en plus difficiles à collecter. En effet, ces particules sont certes très facilement chargées, mais elles se déchargent également très vite au contact des électrodes collectrices et acquièrent alors la même charge que ces dernières provoquant leur répulsion vers le flux d'air et leur réentrainement. Un autre inconvénient potentiel des électrofiltres vis-à-vis des particules ultrafines est l'important volume occupé par un dépôt de PUF entre les électrodes (400 cm^3 pour une masse déposée de 76 g et une porosité de

dépôt d'environ 95 %). En effet, des essais internes à l'INRS ont montré que de tels volumes pouvaient favoriser le ré-envol d'amas de particules entre les plaques.
Ce type de séparateurs n'utilisant que des effets électrostatiques pour retenir les particules appartient à une catégorie plus large d'épurateur. Cette catégorie est définie par le type de surfaces collectrices qui dans ce cas sont des parois non-perméables. On retrouve notamment dans cette catégorie d'autres épurateurs tels que les cyclones dont l'efficacité est en général limitée pour la collecte de particules ultrafines. Ces derniers peuvent cependant être modifiés pour incorporer des effets électrostatiques en introduisant une électrode cylindrique en leur centre, les bords extérieurs du cyclone servant alors d'électrodes collectrices.
Malgré un certain nombre d'avantages, les électrofiltres peinent à s'imposer dans les industries utilisant des procédés de projection thermique de métaux du fait d'un coup d'investissement souvent jugé, à tort ou à raison, trop élevé pour les débits à traiter en comparaison d'autres techniques.

I.5.2 Les médias filtrants ou couches filtrantes

L'autre grande catégorie d'épurateurs correspond aux médias filtrants. Dans ce type de filtres, la surface collectrice correspond à un ensemble d'objets indépendants, enchevêtrés, appelés collecteurs et qui forment une couche filtrante.

I.5.2.1 Les mécanismes de transport

Si dans le cas des électrofiltres la collecte des particules se fait par l'intermédiaire d'un mécanisme de transport (interactions électrostatiques) favorisant la collision des particules avec une surface collectrice, dans le cas des couches filtrantes, le principe est identique, à la différence que les mécanismes de transport vers la surface d'un collecteur sont plus nombreux et d'intensité variable en fonction de la taille des particules et des collecteurs. Dans le cas des particules ultrafines de diamètre supérieur à 10 nm, il est couramment admis que les particules rentrant en contact avec un collecteur sont obligatoirement collectées (pas de phénomène de rebond (Mouret 2008)). Sur la base de ce constat, les termes « mécanismes de transport » et « mécanismes de collecte » pourront être employés indifféremment. Les différents mécanismes de transport de particules susceptibles d'intervenir dans les couches filtrantes sont : la diffusion Brownienne, l'interception, l'impaction inertielle, les interactions électrostatiques et le tamisage (Figure I-6).

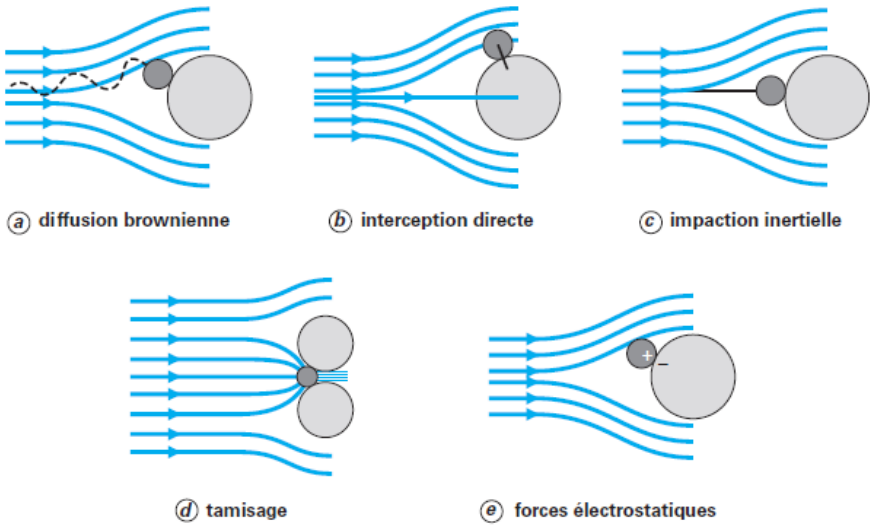


Figure I-6 Illustrations du principe des différents mécanismes de transport (d'après Le Coq 2016)

a : Pour des particules de taille inférieure ou de l'ordre de grandeur du libre parcours moyen des molécules du gaz porteur, les collisions de ces molécules avec les particules de l'aérosol produisent une force non-compensée et aléatoire qui agit sur ces dernières et leur donne un mouvement erratique aléatoire. Ce mouvement aléatoire, dit Brownien, implique que les particules ne suivent pas les lignes de courant. Du fait de ces collisions aléatoires, les particules sont réparties de façon spatialement uniforme dans un milieu infini sans obstacle. Dans un milieu filtrant, la présence des collecteurs rompt cette uniformité et un gradient de concentration particulaire apparait alors entre la surface des collecteurs et une zone suffisamment éloignée où cette concentration reste constante. A cause de ce gradient, un flux diffusionnel entre le cœur de l'écoulement et la surface des collecteurs s'établit. L'intensité du mouvement brownien étant une fonction décroissante du diamètre des particules, la probabilité qu'une particule au voisinage d'un collecteur rentre en contact avec ce dernier et soit donc collectée augmente également avec la diminution du diamètre des particules. En l'absence d'effets électrostatiques, la collecte par **diffusion brownienne** devient significative et prépondérante pour des particules de diamètre inférieur à environ 100 nm.

b : **L'interception directe** est un mécanisme qui devient significatif en termes de taille de particules entre la diffusion brownienne et l'impaction inertielle, soit pour des tailles de quelques dixièmes de micromètre. Si toutes les forces agissant sur une particule sont négligeables alors, cette dernière suit les lignes de courant. La capture par interception, représentée schématiquement sur la Figure I-6, a donc lieu si une ligne de courant passe à une distance du collecteur inférieure au rayon de la particule. L'interception est une conséquence de la taille finie des particules et peut être décrite par le rapport des diamètres des particules et des collecteurs, i.e., le paramètre d'interception, R :

c : L'un des principaux mécanismes de capture pour les particules de taille au moins supérieure au micromètre, en l'absence d'autres forces externes significatives, est **l'impaction inertielle**. En supposant que la direction du flux coïncide avec l'axe de symétrie du collecteur, les particules suivent les lignes de courant du fluide tant qu'elles sont éloignées du collecteur. A son approche, les particules ne peuvent plus suivre les lignes de courant contournant le collecteur en raison d'une force d'inertie trop importante et viennent directement s'impacter sur ce dernier.

d : **Le tamisage** est le mécanisme de capture prépondérant lorsque les particules ont une taille supérieure ou égale à la dimension caractéristique des pores de la couche filtrante i.e., leur plus faible section. Ce mécanisme n'est donc prépondérant que pour des particules de plusieurs dizaines voire centaines de micromètre.

e : Le mécanisme de collecte par **interactions électrostatiques** peut être extrêmement important. Les particules ainsi que les collecteurs peuvent être chargés électriquement par des processus naturels, ou artificiels. En effet, dès lors que l'on met en suspension un aérosol il y a apparition de charges à la surface des particules dues à la présence d'ions dans l'air qui diffusent vers ces dernières. Cette charge peut être optimisée en augmentant le nombre d'ions dans l'air en l'ionisant comme dans les électrofiltres décrits précédemment. Les différentes interactions entre une particule et un collecteur pouvant être prises en compte sont les suivantes (Nielsen et Hill 1976; Chi Tien et Ramarao 2011):

- Lorsque la particule et le collecteur sont tous les deux chargés, il se produit une répulsion ou une attraction entre les deux. Cette interaction est la force de Coulomb.
- une particule chargée induit une charge électrique de signe opposée à la surface d'un collecteur neutre créant alors une attraction entre les deux. Cette interaction est appelée force image.

- De manière similaire, un collecteur chargé induit des charges de signe opposé en surface de la particule neutre, il en résulte une attraction supplémentaire entre les deux corps. Cette interaction est appelée force de polarisation.
- Un champ électrique externe uniforme exerce sur une particule chargée une force importante utilisée dans les électrofiltres.

D'après les plages de diamètre de particules pour lesquelles les différents mécanismes décrits ci-dessus sont significatifs ou prépondérants, l'évolution qualitative des efficacités fractionnelles des différents mécanismes de collecte peut être obtenue (Figure I-7). On remarque ainsi que de manière générale, l'efficacité globale des médias filtrants présente un minimum pour des diamètres de particules aux alentours de 200-500 nm. Ce minimum, appelé MPPS (Most Penetrating Particle Size), est lié au fait que, dans cette plage de diamètres, les particules sont trop grosses pour être piégées efficacement par diffusion brownienne et encore trop fines pour que l'impaction inertielle et l'interception directe soient significatives.

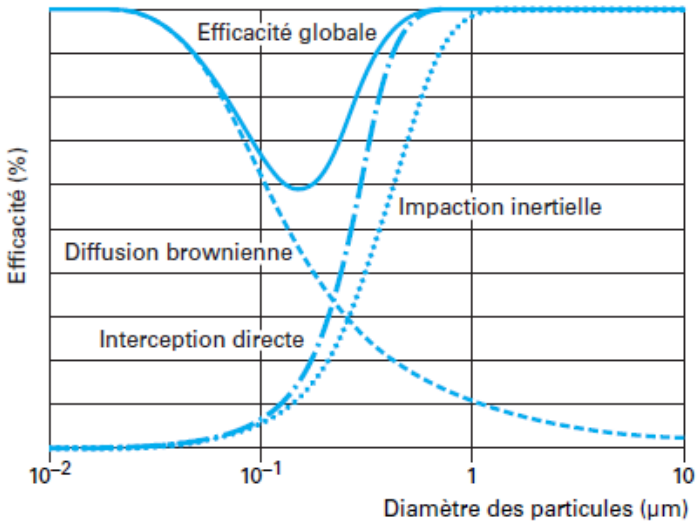


Figure I-7 Evolutions qualitatives des efficacités de collecte d'un média filtrant pour les différents mécanismes de collectes (d'après Le Coq 2016)

I.5.2.2 Les médias fibreux

Les couches filtrantes les plus utilisées dans l'industrie pour collecter les particules ultrafines de l'air sont les médias fibreux. Comme leur nom l'indique, les collecteurs composant ces couches filtrantes sont de type fibres cylindriques. L'ordre de grandeur du diamètre de ces fibres est compris usuellement entre 1 µm et quelques dizaines de µm. A noter toutefois, que des couches composées de nanofibres peuvent être ajoutées en amont ou en aval de filtres composés de microfibres (Leung, Hung, et Yuen 2009). En fonction des applications, les fibres peuvent être arrangées de différentes façons au sein de la couche filtrante et prendre ainsi la forme de médias fibreux tissés ou non-tissés (feutre, papier filtrants…). Dans le cas de la filtration de l'air, la majorité des filtres sont aujourd'hui de types non-tissés et leur part ne cesse d'augmenter depuis les années 1980 alors que celle des médias tissés reste stable (Figure I-8). Cette tendance est en partie liée au fait que les médias non-tissés sont aujourd'hui moins chers et moins complexes à fabriquer que les médias tissés. Ces derniers sont toutefois encore utilisés dans des applications spécifiques demandant une résistance mécanique élevée.

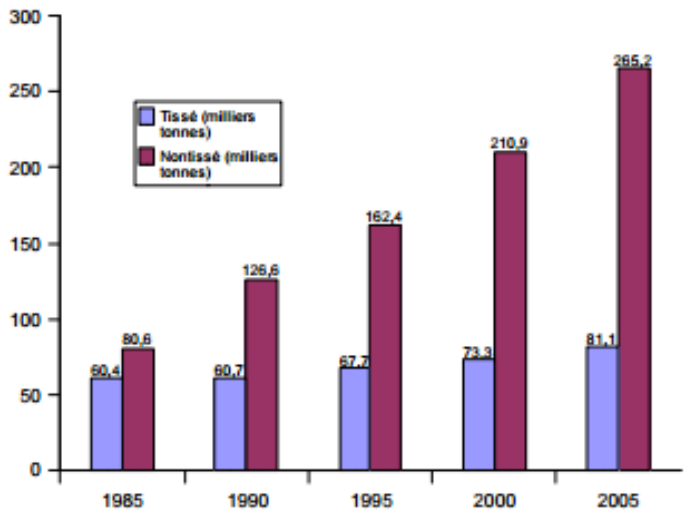


Figure I-8 Consommation des textiles utilisés en filtration en milliers de tonnes dans le monde (Payen 2009)

On rencontre dans les industries générant de grandes quantités de particules ultrafines principalement deux types de filtre à fibres : les filtres à manches (ou à poches) et les filtres à cartouches (ou à cassettes).

- **Les filtres à manches ou à poches**

Les filtres à manches sont constitués d'un caisson fermé à sa base par une trémie, dans lequel sont suspendues verticalement des manches filtrantes cylindriques ouvertes à leur extrémité supérieure (3 à 6 m de haut et 10-15 cm de diamètre). Le flux gazeux à traiter pénètre dans l'installation puis passe ensuite à travers les manches filtrantes de l'extérieur vers l'intérieur, les gaz épurés étant évacués par l'extrémité ouverte des manches (Figure I-9 – Gauche). Dans certains cas des chicanes sont ajoutées juste après l'entrée des gaz afin de se débarrasser dans un premier temps de la fraction la plus grossière des particules qui tombent alors par gravité dans la trémie de récupération. Compte tenu des dimensions des manches et de leur géométrie cylindrique, la surface effective de filtration peut devenir très importante et faire baisser la vitesse de filtration pour un même débit en multipliant le nombre de manches. Cette dernière est couramment comprise entre 1 cm/s et 10 cm/s (Siret 2001).

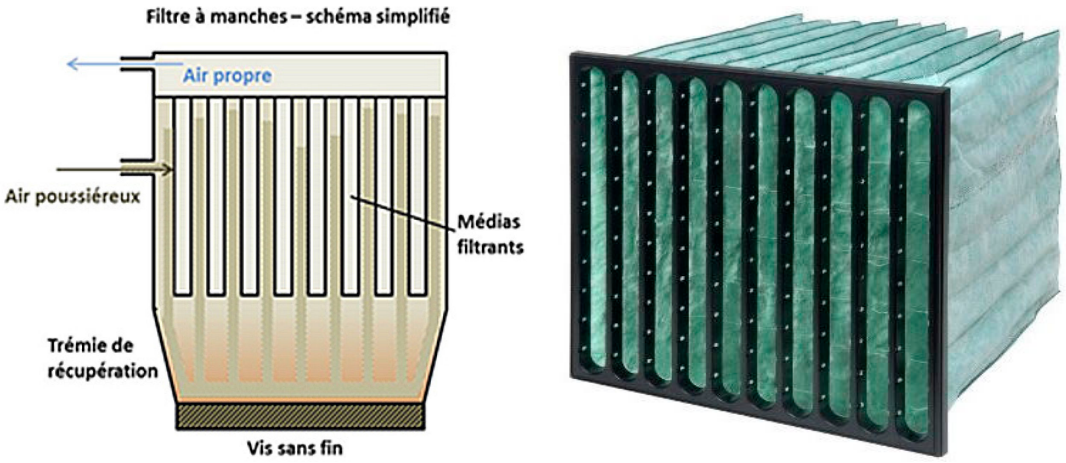


Figure I-9 Schéma de principe d'une installation industrielle de dépoussiérage utilisant un filtre à manches (gauche) et d'un élément de filtre à poches (droite)

La différence entre les filtres à manches et les filtres à poches réside dans le fait que, pour ces derniers, les éléments filtrants (poches) sont attachés à un cadre rectangulaire placé horizontalement, l'écoulement se faisant alors de l'intérieur des poches vers l'extérieur (Figure I-9 – Droite). Les filtres à poches sont parfois préférés aux filtres à manches en raison d'un plus faible encombrement.
Ces types de filtres peuvent être utilisés dans un large éventail de configurations : débits allant de quelques m^3/h à plusieurs millions de m^3/h, concentrations jusqu'à 100 g/m^3 et particules micro- ou nanométriques. La séparation gaz/particules se fait durant une très courte période dans la profondeur de la couche filtrante avant de s'effectuer en surface menant à la formation d'un gâteau de filtration augmentant à la fois l'efficacité de collecte et la perte de charge. Lorsque la perte de charge atteint une valeur limite fixée en fonction du débit à filtrer et de la consommation d'énergie, le filtre doit être décolmaté en éliminant le gâteau de particules en surface des manches pour rétablir une perte de charge acceptable. La perte de charge après décolmatage est appelée perte de charge résiduelle.

Bien qu'en général très efficace, les filtres à manches présentent tout de même une limitation. En effet, aucun gâteau ne peut se former dans le cas de particules présentant une trop faible capacité d'agglomération une fois déposées (exemple : aerosil®, alumine à état de surface modifié…). Ceci empêche alors l'amélioration de l'efficacité sous l'effet du colmatage et prolonge une phase de filtration dans la profondeur qui modifie irréversiblement la structure du média.

- **Les filtres à cartouches ou à cassettes**

Les cartouches filtrantes sont constituées de médias fibreux dont la mise en forme est cylindrique (Figure I-10 – gauche). Les cassettes ou panneaux filtrants sont basés sur le même principe à la différence près que le média n'est pas agencé selon une géométrie cylindrique mais plane (Figure I-10 – droite).

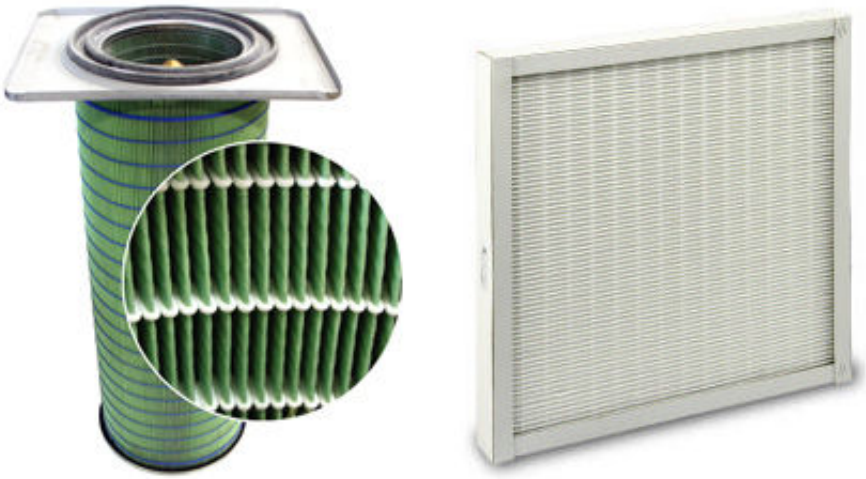


Figure I-10 Exemples de cartouche plissée (gauche) et de cassette plissée (droite)

La forme cylindrique permet, comme dans le cas des filtres à manches, d'augmenter la surface du filtre et donc de diminuer la vitesse de filtration et la perte de charge (vitesse conseillée de 0,1 à 0,2 cm/s par certains fabricants pour les PUF métalliques) en comparaison du même média fibreux mis sous la forme d'une cassette. Dans un même but de réduction de la vitesse de filtration tout en réduisant l'encombrement, un plissage du média fibreux est effectué dans la plupart des dépoussiéreurs industriels.

En effet, ce plissage permet d'augmenter la surface de filtre mis en œuvre dans une canalisation de section donnée en comparaison du même média fibreux non-plissé (Le Coq 2016).
Les dépoussiéreurs industriels utilisant des cartouches/cassettes fonctionnent sur le même principe que ceux employant des manches filtrantes. Ainsi, un certain nombre de cartouches/cassettes est inséré au sein d'un caisson muni d'une trémie de récupération. Dans le cas des cartouches, leur orientation peut être variable : horizontale, verticale ou oblique. Comme dans le cas des manches filtrantes, les particules sont censées être collectées autant que possible en surface du media filtrant afin d'éviter qu'une trop grande quantité de particules ne soit irrémédiablement piégée dans la profondeur du média fibreux et que la perte de charge résiduelle n'augmente trop rapidement. Les performances en matière de vitesse de filtration, d'efficacité et de perte de charge des filtres plissés sont intrinsèquement liées, pour un type de particules donné, aux caractéristiques géométriques des plis, i.e., leur hauteur et l'espacement maximal entre les deux bords d'un même pli (pas de plissage) (Lo, Chen, et Pui 2010).

- **Les techniques de décolmatage des médias fibreux**

Au fur et à mesure de la collection des particules générées, la perte de charge des médias filtrants augmente jusqu'à atteindre une valeur non-acceptable d'un point de vue énergétique et économique (augmentation de l'énergie à fournir pour maintenir un débit constant) ou bien du point de vue de la qualité de l'air (baisse du débit de ventilation). Afin de retrouver une perte de charge acceptable, plusieurs techniques de décolmatage peuvent être utilisées afin de déstabiliser le gâteau de filtration et le faire chuter dans la trémie du dépoussiéreur. Que l'on utilise des filtres à manches ou des dépoussiéreurs à cartouches/cassettes plissées, ces techniques sont, à l'exception d'une, sensiblement identiques.

- Le nettoyage par secouage est la plus ancienne technique et correspond en vulgarisant au battage d'un tapis dont on veut enlever la poussière. Cette technique a surtout été utilisée pour les manches filtrantes. Dans ce cas, l'extrémité ouverte des manches est accrochée à un dispositif mécanique qui va imprimer un mouvement vertical et/ou horizontal à une assez basse fréquence (quelques Hertz) pendant environ 30 secondes. Cette technique présente l'avantage de ne pas endommager le matériau des manches en l'exposant à de faibles contraintes mécaniques. En revanche, elle présente certains inconvénients relatifs à l'entretien de la mécanique de secouage sujette à l'encrassement par les particules. De plus, cette technique doit être appliquée hors-ligne, i.e., en stoppant le procédé de filtration (Siret 2001). Du fait du développement d'autres techniques plus performantes, le décolmatage par secouage est de moins en moins utilisé de nos jours (Bicocchi et L'Hospitalier 2002).
- Le nettoyage par contre-flux de gaz consiste à interrompre le flux de gaz à traiter dans les éléments filtrants devant être nettoyés pour y faire circuler un gaz propre en sens inverse. Le gaz propre s'écoulant à contre-sens permet progressivement d'exercer une contrainte suffisante sur le gâteau de filtration pour le décrocher de la surface des médias fibreux. Lors du décolmatage, le soufflage d'air propre se fait à relativement faible débit et sa durée d'injection peut aller de 30 s à plusieurs minutes. Cette technique ne nécessite pas l'arrêt complet du dépoussiéreur mais requiert tout de même qu'il soit compartimenté pour qu'une partie de ce dernier fonctionne en filtration et l'autre en décolmatage.
- Le nettoyage par impulsion de gaz consiste en l'injection très brève d'air à moyenne (2 à 3 bar) ou haute (6 à 8 bar) pression à contre-courant au sein des éléments filtrants. Cette impulsion d'air génère une onde de choc qui se propage dans la structure des médias fibreux des cartouches ou des manches et qui provoque le décrochage du gâteau de filtration. Cette technique présente l'avantage d'être réalisable en ligne, i.e., sans arrêt du procédé, et de ne pas

nécessiter non-plus la compartimentation de l'installation. Le décolmatage par impulsion inverse de gaz constitue aujourd'hui la solution la plus courante. Il présente néanmoins certains inconvénients tels qu'une consommation énergétique élevée en comparaison des autres techniques ainsi qu'une usure prématurée des médias fibreux du fait de l'importante énergie transmise par l'onde de choc.

- **Cycle de fonctionnement d'un dépoussiéreur à manches ou à cartouches/cassettes**

Au cours d'un procédé de filtration d'aérosols par les deux types de dépoussiéreurs présentés ci-avant, l'évolution de la perte de charge évolue en trois phases (Figure I-11). Durant la première phase correspondant à l'utilisation initiale du filtre, la perte de charge croît très fortement sous l'effet d'un faible dépôt dans la profondeur du filtre et surtout de la croissance du gâteau en surface. Après les premiers décolmatages, la perte de charge résiduelle augmente graduellement jusqu'à atteindre une valeur quasi-constante. Le filtre rentre alors dans une phase de stabilisation des performances où la durée d'un décolmatage à un autre évolue lentement. Ceci s'explique par une faible évolution du dépôt en profondeur qui est irréversible et surtout par le fait que chaque décolmatage n'enlève pas la totalité du gâteau de particules (Simon 2005). Cette fraction non-décollée étant de plus en plus importante au fur et à mesure du fonctionnement du procédé, la perte de charge résiduelle augmente alors jusqu'à un point où la durée entre deux décolmatages successifs devient trop restreinte. Cela marque le début d'une troisième phase durant laquelle la perte de charge résiduelle augmente fortement à nouveau. Une fois cette troisième phase atteinte, il est nécessaire de démonter les manches ou les cartouches/cassettes pour les nettoyer manuellement ou les remplacer par des neuves.

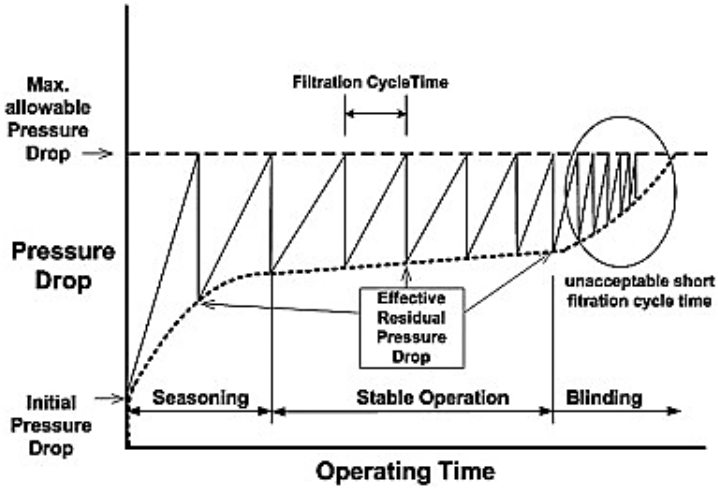


Figure I-11 Evolution qualitative de la perte de charge d'une cartouche plissée au cours de son cycle de fonctionnement (Lo, Chen, et Pui 2010)

De manière générale après les décolmatages, il se produit une baisse de l'efficacité du filtre du fait de l'absence de gâteau et donc une augmentation de la concentration en aval. Cette baisse d'efficacité est d'autant moins importante que la perte de charge résiduelle augmente (Peukert et Wadenpohl 2001).

- **Comportement spécifique des dépoussiéreurs à médias fibreux vis-à-vis des particules ultrafines**

Les dépoussiéreurs employant des médias fibreux comme couches filtrantes ont très largement fait leur preuve vis-à-vis de l'épuration de particules fines dans la plupart des secteurs industriels. A titre d'exemple, les filtres à manches utilisés dans des conditions normales (pression de dépoussiérage, température, humidité …) peuvent durer plusieurs années (Bicocchi et L'Hospitalier 2002). En revanche, les professionnels ayant recours à des procédés générant de grandes quantités de particules ultrafines font face au quotidien à un problème d'encrassement irréversible des médias fibreux spécifique aux PUF. Les difficultés rencontrées dans ce type de situations ont été étudiées notamment par Bémer et al. (2013). Dans cette étude, les auteurs ont colmaté des cartouches plissées avec des fumées de métallisation puis étudié la qualité du décolmatage en ligne et hors ligne par impulsion inverse d'air comprimé. Parmi les résultats importants de cette étude figure le fait que le décolmatage en ligne est inopérant vis-à-vis de ce type de PUF. Il a également été constaté que le décolmatage hors-ligne (i.e., en stoppant le procédé de métallisation) produisait une baisse très nette de la perte de charge, mais que cette régénération de la perte de charge s'avère de très courte durée. Ce comportement s'explique par un décolmatage incomplet durant lequel le gâteau n'est que partiellement retiré (par plaques). La difficulté de la dislocation des gâteaux de PUF par les techniques classiques de décolmatage est justifiée dans la littérature par la forte augmentation des forces d'adhésion entre particules et avec la surface du filtre. Cette augmentation des forces d'adhésion est en grande partie liée à celle de la surface spécifique des particules à l'échelle nanométrique.

L'une des solutions envisagées pour pallier ce problème est de procéder à un pré-coating des cartouches plissées avant la filtration de PUF. Cette opération consiste à pré-colmater le filtre avec des particules relativement grossières (microniques) injectées dans le circuit de ventilation. La couche de particules microniques formée en surface du média agit alors comme un filtre auxiliaire augmentant l'efficacité de collecte, protégeant le média fibreux et facilitant le décolmatage. Même si des résultats satisfaisants sont obtenus par cette technique en procédant à des décolmatages hors ligne, le pré-coating augmente cependant significativement la quantité de déchet en comparaison des seules particules ultrafines. Dans leur étude, Bémer et al. (2013) ont estimé que pour une unité moyenne de métallisation (20 000 m^3/h), la consommation de poudre de pré-coating (poussières de calcaire) serait de plusieurs tonnes par an. De plus, l'ajout d'un système d'injection de poudre complexifie l'unité de dépoussiérage.

I.6 Conclusion

Devant la réticence du milieu industriel de la projection thermique de métaux à utiliser des électrofiltres et les problèmes de colmatages irréversibles rencontrés par les médias fibreux vis-à-vis des PUF métalliques, un certain nombre d'études se focalisent sur l'amélioration des techniques de décolmatage via des traitements de surface des médias fibreux pour limiter la force d'adhésion des particules, des pressions de décolmatage plus élevées ou du pré-coating. Cependant, il apparait également intéressant d'aborder sous un autre angle ce problème et d'étudier ainsi des techniques de filtration alternatives ou complémentaires. Afin d'apporter une réponse à ce problème environnemental et de santé/sécurité au travail que pose l'épuration des particules ultrafines dans l'industrie, ce travail a été entrepris depuis plusieurs années dans un projet commun à l'Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS) et au Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP, UMR CNRS/UL 7274). Afin de tester les différentes solutions alternatives dans des conditions représentatives de celles rencontrées dans l'industrie, les fumées de métallisation ont été prises comme référence dans le cadre de ce projet. La métallisation est un procédé de traitement de surface par projection thermique de métaux. Les caractéristiques des fumées issues de ce procédé générant des PUF métalliques en importante quantité seront détaillées ultérieurement dans ce manuscrit.
L'une des alternatives ayant fait l'objet d'une attention particulière concerne les séparateurs par voie liquide de type colonnes à bulles. Le principe de ce type de séparateurs est de faire buller le gaz chargé en particules dans une colonne de liquide. Les bulles sont créées en faisant passer le gaz au travers d'un ou plusieurs orifices (plaque perforée). Les particules ultrafines sont transférées par le mécanisme conventionnel de diffusion brownienne vers l'interface gaz/liquide des bulles afin d'y être absorbées. L'efficacité de collecte de ce procédé dépend principalement de la taille et de la répartition des bulles dans la colonne. Ainsi, des bulles fines et uniformément réparties augmentent les performances par une plus grande surface d'échange. Bien que les efficacités de collecte soient intrinsèquement moindres que celles des médias fibreux ou des électrofiltres (aux alentours de 70% pour des bulles de 3 mm de diamètre), les colonnes à bulles présentent l'avantage d'opérer à perte de charge constante et ainsi, de ne pas nécessiter de décolmatage. De plus des possibilités d'intensification existent : diminution du diamètre des bulles et/ou ajout d'un garnissage afin d'augmenter le temps de séjour des bulles dans le liquide. Malgré ces avantages, les colonnes à bulles conviennent difficilement dans le cas d'installations industrielles importantes rejetant des débits de plusieurs dizaines de milliers de m^3/h du fait de l'encombrement important de ce type de dépoussiéreurs. Pour plus d'informations sur ce sujet, le lecteur peut se référer à Charvet, Bardin-Monnier, et Thomas 2011 et Cadavid-Rodriguez et al. 2014.

Comme autre alternative aux électrofiltres et aux médias fibreux pour la filtration de particules ultrafines, cette étude s'intéresse dans le cadre de ce doctorat aux lits granulaires. En effet, bien qu'initialement moins efficaces et plus résistants à l'écoulement, les lits granulaires piègent les particules dans la profondeur du média et présentent ainsi une dynamique de colmatage différente des médias fibreux. Ce colmatage dans la profondeur pourrait permettre notamment un décolmatage en ligne plus efficace (Chi Tien et Ramarao 2011; Bémer et al. 2015). De plus, une fois la totalité de la capacité de rétention du volume du lit granulaire exploitée, il pourrait également être possible de laver les collecteurs, par exemple via un bain à ultrasons, afin de les réutiliser comme nouveaux médias filtrants. Cette capacité à restaurer la perte de charge en ligne et à être recyclés pourrait peut-être faire des lits granulaires une alternative économiquement viable aux techniques usuelles.

Par ailleurs, du fait de la relative abondance de matériaux granulaires résistants à la corrosion ou à des températures élevées, les lits granulaires représenteraient aussi une solution pour certaines industries traitant des aérosols particuliers susceptibles d'endommager les filtres à fibres classiques.

Du fait de ces nombreux avantages potentiels, un grand nombre d'études théoriques et expérimentales sur la filtration des aérosols par lits granulaires ont vues le jour depuis les années 1970. Ainsi, les performances initiales en matière d'efficacité et de perte de charge sont particulièrement bien documentées et de nombreux modèles sont aujourd'hui capables de les prédire avec une précision satisfaisante que les particules soient soumises à un ou plusieurs des mécanismes de transport précédemment décrits, i.e., pour toutes les tailles de particules. (Tardos, Abuaf, et Gutfinger 1978; Gutfinger et Tardos 1979). Des revues de ces différents modèles sont disponibles dans la littérature (Chi Tien et Ramarao 2011; C. Tien 2012; Clift, Ghadiri, et Thambimuthu 1981; Coury, Thambimuthu, et Clift 1987). Si l'état initial est décrit avec précision, ce n'est toutefois pas le cas de l'évolution temporelle des performances au cours du colmatage par des aérosols. En effet, une grande proportion des études traitant du colmatage de lit granulaire concerne des cas de filtration en milieu liquide dont des extrapolations à ceux des aérosols s'avèrent compliquées du fait d'interactions très différentes entre le fluide et les particules (Théorie de DLVO) (O'Melia et Ali 1978; C. Tien, Turian, et Pendse 1979). Parmi les études traitant du colmatage de lits granulaires par des aérosols, il n'existe à notre connaissance aucune impliquant des particules ultrafines. En effet, ces travaux se focalisent principalement sur des particules d'au moins 1 µm de diamètre (Walata, Takahashi, et Tien 1986; Jung, Walata, et Tien 1989; Gutfinger, Pnueli, et Fichman 1988). Les mécanismes de transport des particules étant foncièrement différents pour ces deux types de particules, la localisation dans le lit et la forme du dépôt autour des collecteurs peuvent être amenées à changer considérablement (Kasper, Schollmeier, et Meyer 2010). Ces différences de morphologie de dépôt impactant directement l'écoulement du fluide, les résultats de colmatages par des particules microniques sont à nouveau très difficilement extrapolables au cas des PUF. Pour pallier ce manque de connaissance et ainsi pouvoir répondre à la problématique posée par ce travail, une étude expérimentale du colmatage de lits granulaires par des aérosols de particules ultrafines a été réalisée dans un premier temps. Les résultats de ces expériences sont présentés au chapitre suivant.

Références

Bau, S. 2008. *Étude des moyens de mesure de la surface des aérosols ultrafins pour l'évaluation de l'exposition professionnelle*.

Bémer, D., R. Régnier, Y. Morele, F. Grippari, J. Appert-collin, et D. Thomas. 2013. « Study of clogging and cleaning cycles of a pleated cartridge filter used in a thermal spraying process to filter ultrafine particles ». *Powder Technology* 234 (janvier): 1‑6.

Bémer, D., L. Wingert, Y. Morele, et I. Subra. 2015. « Feasibility of Granular Bed Filtration of an Aerosol of Ultrafine Metallic Particles Including a Pressure Drop Regeneration System ». *Journal of the Air & Waste Management Association (1995)* 65 (9): 1119‑26.

Bicocchi, Stéphane, et C. L'Hospitalier. 2002. *Les techniques de dépoussiérage des fumées industrielles: état de l'art*. Ed. Tec & Doc.

Cadavid-Rodriguez, M.C., A. Charvet, D. Bemer, et D. Thomas. 2014. « Optimization of bubble column performance for nanoparticle collection ». *Journal of Hazardous Materials* 271 (avril): 24‑32.

Charvet, A., N. Bardin-Monnier, et D. Thomas. 2011. « Can bubble columns be an alternative to fibrous filters for nanoparticles collection? » *Journal of Hazardous Materials* 195 (novembre): 432‑39.

Chazelet, S., S. Binet, L. Gaté, G. Hédelin, S. Malard, M. Ricaud, D. Rousset, et O. Witschger. 2016. « Dioxyde de titane nanométrique : De la nécessité d'une valeur limite d'exposition professionnelle », HST, , n° 242: 46‑51.

Clift, R., M. Ghadiri, et K.V. Thambimuthu. 1981. « Filtration of gases in fluidized beds ». In *Progress in Filtration and Separation*, 2:75–123. Elsevier.

Courtois, B., et S. Cadou. 2012. « Valeurs limites d'exposition professionnelle aux agents chimiques en France ». ED984. INRS.

Coury, J.R., K.V. Thambimuthu, et R. Clift. 1987. « Capture and rebound of dust in granular bed gas filters ». *Powder Technology* 50 (3): 253–265.

Directive 2008/50/CE. 2008.

Gutfinger, C., D. Pnueli, et M. Fichman. 1988. « Effect of particle loading on granular bed filtration—Extension of the CEF model to polydisperse systems ». *Journal of Aerosol Science* 19 (4): 443‑50.

Gutfinger, C., et G. I. Tardos. 1979. « Theoretical and experimental investigation on granular bed dust filters ». *Atmospheric Environment (1967)* 13 (6): 853–867.

Gwinn, M. R., et V. Vallyathan. 2006. « Nanoparticles: Health Effects—Pros and Cons ». *Environmental Health Perspectives* 114 (12): 1818‑25.

Jung, Y., S. A. Walata, et C. Tien. 1989. « Experimental Determination of the Initial Collection Efficiency of Granular Beds in the Inertial-Impaction-Dominated Region ». *Aerosol Science and Technology* 11 (2): 168‑82.

Kasper, G., S. Schollmeier, et J. Meyer. 2010. « Structure and density of deposits formed on filter fibers by inertial particle deposition and bounce ». *Journal of Aerosol Science* 41 (12): 1167–1182.

Le Coq, L. 2016. « Élimination des particules ». *Techniques de l'ingénieur Traitements de l'air* base documentaire : TIB600. (ref. article : g1710).

Leung, W. W., C. Hung, et P. Yuen. 2009. « Experimental Investigation on Continuous Filtration of Sub-Micron Aerosol by Filter Composed of Dual-Layers Including a Nanofiber Layer ». *Aerosol Science and Technology* 43 (12): 1174‑83.

Lo, L., D. Chen, et D. Y. H. Pui. 2010. « Experimental study of pleated fabric cartridges in a pulse-jet cleaned dust collector ». *Powder Technology* 197 (3): 141‑49.

Contexte général

Mouret, G. 2008. *Étude de la filtration des aérosols nanométriques*.

« Nanoscience and Nanotechnologies: Opportunities and Uncertainties ». 2004. The Royal Society. http://www.nanotec.org.uk/report/Nano%20report%202004%20fin.pdf.

« Nanotechnologies, Nanomatériaux, Nanoparticules - Quels impacts sur l'homme et l'environnement ? » 2007. INERIS.

« NF EN 481 - Atmosphères des lieux de travail - Définition des fractions de taille pour le mesurage des particules en suspension dans l'air ». 2016.

Nielsen, K. A., et J. C. Hill. 1976. « Collection of Inertialess Particles on Spheres with Electrical Forces ». *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 15 (3): 149‑57.

O'Melia, C. R., et W. Ali. 1978. « The role of retained particles in deep bed filtration ». In *Progress in Water Technology*.

Ostiguy, C., B. Roberge, C. Woods, et B. Soucy. 2010. « Les nanoparticules de synthèse - Connaissances actuelles sur les risques et les mesures de prévention en SST ». R-646. IRSST.

Payen, J. 2009. *Etude et développement de structures fibreuses nontissées dédiées à la filtration de particules fines dans l'air*.

Peukert, W., et C. Wadenpohl. 2001. « Industrial separation of fine particles with difficult dust properties ». *Powder Technology* 118 (1–2): 136‑48.

Reynier, M. 2013, Les nanomatériaux, bilan et perspectives en santé et sécurité au travail - Définir et repérer les nanomatériaux, Hygiène et sécurité du travail, no 232: 23‑27.

Ricaud, M., et Olivier Witschger. 2013, Les nanomatériaux. Définitions, risques toxicologiques, caractérisation de l'exposition professionnelle et mesures de prévention.

Schulte, P. A., V. Murashov, R. Zumwalde, E. D. Kuempel, et C. L. Geraci. 2010. « Occupational Exposure Limits for Nanomaterials: State of the Art ». *Journal of Nanoparticle Research* 12 (6): 1971‑87.

Simon, X. 2005. *Etude du décolmatage pneumatique des dépoussiéreurs à manches*.

Siret, B. 2001. « Dépoussiérage et dévésiculage ». *Techniques de l'ingénieur Opérations unitaires : traitement des gaz* base documentaire : TIB485DUO (ref. article : j3580).

« StatNano Annual Report 2015 ». 2016. Consulté le novembre 12. http://statnano.com/publications/3864.

Tardos, G. I., N. Abuaf, et C. Gutfinger. 1978. « Dust Deposition in Granular Bed Filters: Theories and Experiments ». *Journal of the Air Pollution Control Association* 28 (4): 354–363.

Tien, C. 2012. *Principles of Filtration*. Elsevier.

Tien, C., R. Turian, et H. Pendse. 1979. « Simulation of the Dynamic Behavior of Deep Bed Filters ». *AIChE Journal* 25 (3): 385‑95.

Tien, C., et B. V. Ramarao. 2011. *Granular Filtration of Aerosols and Hydrosols*. Elsevier.

Walata, S. A., T. Takahashi, et C. Tien. 1986. « Effect of Particle Deposition on Granular Aerosol Filtration: A Comparative Study of Methods in Evaluating and Interpreting Experimental Data ». *Aerosol Science and Technology* 5 (1): 23–37.

« Which nanomaterials have been studied more? » 2014. *http://statnano.com*. http://statnano.com/news/46817.

II. Etude expérimentale du colmatage de lits granulaires

Afin d'étudier la filtration d'aérosols de nanoparticules par des lits granulaires, il est important de recueillir des données expérimentales permettant d'observer l'évolution de leur comportement au cours du colmatage pour un éventail le plus large possible de conditions opératoires. Par conséquent, un banc d'essais ainsi qu'une méthode de calcul ont été développés afin d'obtenir les évolutions de perte de charge et d'efficacité de collecte en fonction de la masse de particules retenue. En plus du protocole de mesure, les résultats de ces expériences sont présentés dans ce chapitre afin qu'ils puissent servir de points de comparaison avec les simulations numériques et le modèle développé dans la suite de ce manuscrit.

II.1 Matériels & Méthodes

II.1.1 Génération et caractérisation des aérosols

Trois différents matériaux de particules nanostructurées ont été utilisés pour les expériences de colmatage : fer, carbone, zinc-aluminium (Zn-Al).
Les aérosols de fer et de carbone ont été produits par décharge électrique entre deux électrodes au moyen d'un générateur Palas GFG-1000. Dans ce générateur, deux électrodes du matériau voulu se font face au sein d'une chambre en polyamide, l'espace inter-électrodes (environ 2 mm) étant automatiquement gardé constant au fur et à mesure de leur consommation (Figure II-1).

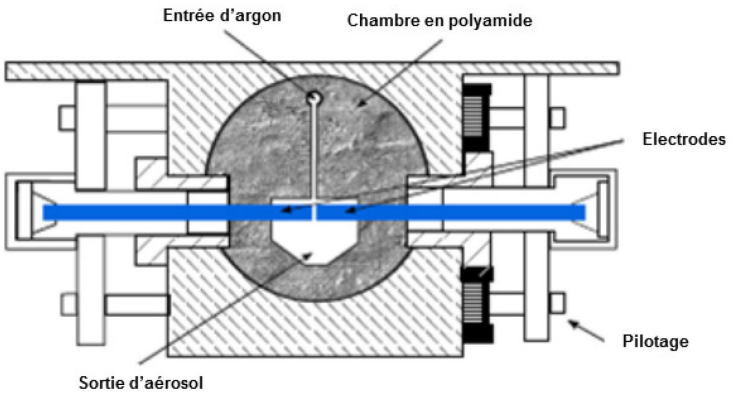


Figure II-1 Schéma de la chambre de génération du générateur du PALAS GFG 1000

Afin d'éviter une possible oxydation des électrodes, la génération se fait sous atmosphère inerte par introduction d'un flux d'argon entre les deux électrodes. Les particules formées par vaporisation aux extrémités des électrodes grâce aux étincelles issues des décharges électriques sont évacuées de la chambre par le flux d'argon. Ces particules forment alors des agglomérats de taille plus ou moins importante selon leur concentration. Cette agglomération peut être en partie réduite et contrôlée par dilution de l'aérosol obtenu au moyen d'un courant d'air comprimé de haute pureté. Le régime de fonctionnement du générateur dépend au final de quatre paramètres : les pressions d'alimentation en air et en argon (réglables par deux manodétendeurs), la fréquence d'étincelle contrôlée par un potentiostat et le matériau des électrodes. Les réglages choisis pour le colmatage des lits granulaires sont regroupés dans le Tableau II-1.

Tableau II-1 Conditions de génération des aérosols par le Palas GFG-1000 lors du colmatage des lits granulaires

Matériau des électrodes	Pression d'argon (bar)	Pression d'air (bar)	Fréquence d'étincelle (Hz)
Carbone	1	1	1000
Fer	1	1	1000

L'aérosol de Zinc-Aluminium a été produit par un générateur automatisé composé d'une unité industrielle de métallisation (Margarido M25) montée sur un banc d'essais. La métallisation est un procédé de projection thermique d'un métal par arc électrique, dans notre cas un alliage composé de 85% de zinc et de 15% d'aluminium. Le principe de ce procédé (Figure II-2) repose sur la génération d'un arc électrique entre deux fils métalliques par application d'une différence de potentiel à leurs bornes (entre 21 et 25 V pour un courant de 250 A). L'alimentation en fils se fait en continu par l'intermédiaire de deux bobines dont la vitesse de déroulement peut être réglée. L'arc électrique permet de former des gouttelettes de métal par vaporisation des extrémités des deux fils, qui sont ensuite projetées par un flux d'air comprimé sur une cible en rotation. Le pistolet au niveau duquel se produit l'arc électrique est monté sur un bras télescopique effectuant un mouvement vertical. Grâce à ce système de rotation/translation, un dépôt homogène peut être obtenu sur la cible. La fraction de vapeurs métalliques non-déposées se condense pour former les fumées de métallisation constituant notre aérosol d'étude. Ces fumées sont canalisées via un système d'aspiration en aval de la cible vers un cyclone (BGI SCC 1.829, diamètre de coupure de 700 nm à 15 l/min) de sorte que seules les nanoparticules servent au colmatage des lits granulaires.

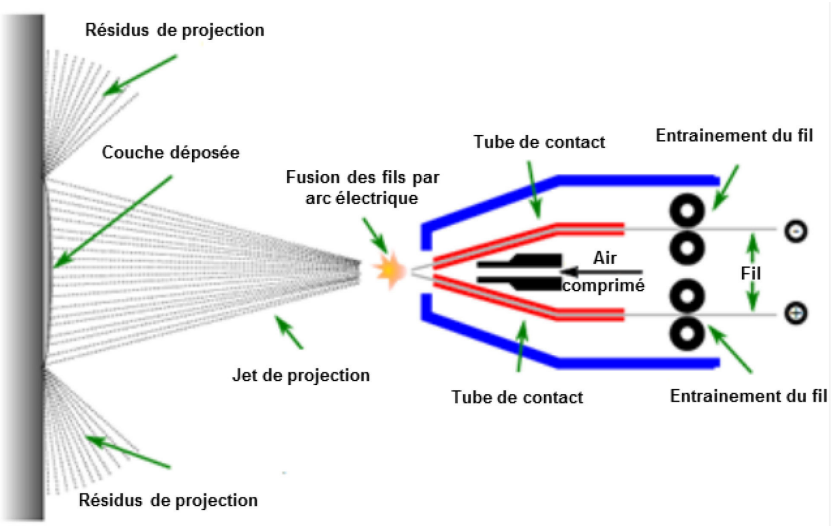


Figure II-2 Schéma de principe du générateur de fumées de métallisation utilisé lors des colmatages des lits granulaires

Les distributions granulométriques des aérosols sont mesurées par un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) composé de deux étages de mesure. Le premier étage consiste en un classifieur électrostatique (DMA 3080, TSI) permettant de diviser l'aérosol en 64 classes granulométriques en réalisant une ségrégation par différence de mobilité électrique. Les particules appartenant à une classe granulométrique donnée sont ensuite dénombrées par un compteur à noyau de condensation (CPC 3776, TSI). Ce type de compteur permet de rendre optiquement détectable les nanoparticules en augmentant leur diamètre par condensation de butanol.

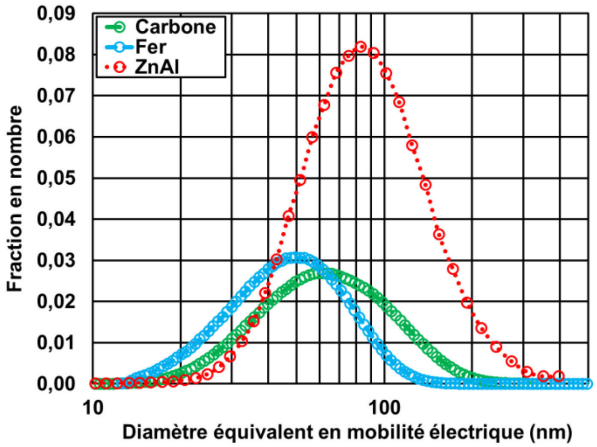


Figure II-3 Distributions granulométriques en nombre des aérosols de carbone, de fer et de zinc-aluminium

Les distributions granulométriques en nombre de ces trois aérosols sont présentées sur la Figure II-3 par ajustement de lois log-normales. Les diamètres médians en nombre exprimés en diamètre équivalent en mobilité électrique sont de 61,6 nm pour les particules de carbone et 46,1 nm pour les particules de fer. Les écart-types géométriques des distributions log-normales sont respectivement de 1,65 et 1,56 pour le carbone et pour le fer. La concentration totale en nombre de ces deux aérosols est de 3.10^7 particules.cm^{-3} pour le carbone et 6.10^6 particules.cm^{-3} pour le fer. L'un des avantages du banc de métallisation réside principalement dans la possibilité de générer un aérosol très concentré soit 2.10^8 particules.cm^{-3} pour un diamètre médian de 78,3 nm avec un écart type géométrique de 1,6.

II.1.2 Montage expérimental

Le montage expérimental comprend une colonne en acier inoxydable de 40 mm de diamètre contenant un lit granulaire composé de collecteurs sphériques en acier inoxydable. Trois différentes tailles de collecteurs ont été testées : 1,6 ; 1 et 0,5 mm. L'épaisseur des lits granulaires est gardée constante en constituant des lits toujours composés d'une même masse de collecteurs (65 g) et en s'assurant que leur porosité soit aussi proche que possible de celle d'un empilement compact de sphères (0,37). Pour s'approcher de cette valeur, nous avons défini le protocole suivant : (1) Tassage des collecteurs versés dans la colonne par un cylindre de 4 cm de diamètre afin d'obtenir une épaisseur uniforme sur toute la section du lit granulaire, (2) Application manuelle de vibrations sur le pourtour de la colonne afin de former un empilement compact (diminution de la porosité). Lors de l'application des vibrations, un contrôle visuel est effectué afin de vérifier que la surface du lit granulaire n'est pas déformée et que la profondeur reste uniforme sur toute la section du lit granulaire. Une fois le lit formé, un débit connu d'air est généré au travers du lit granulaire et la perte de charge est mesurée. La valeur expérimentale est alors comparée à la perte de charge prédite par la loi de Kozeny-Carman afin de vérifier si le comportement aérodynamique initial du lit granulaire est proche de celui attendu théoriquement. Cette comparaison permet notamment de s'assurer de l'absence de passage préférentiel ou de fuites issues de la mise en place de la colonne dans le dispositif expérimental. Avec ce protocole, des lits granulaires d'environ 11 mm de profondeur ont été obtenus pour chaque expérience de colmatage. Les valeurs de perte de charge sont mesurées et enregistrées à intervalles réguliers de 10 secondes à l'aide de capteurs de pression différentielle connectés à l'amont et à l'aval du lit granulaire et reliés à une centrale d'acquisition (Almemo 2690, Ahlborn) (Figure II-4).

Selon l'ordre de grandeur des pertes de charge à mesurer, les capteurs utilisés peuvent couvrir des plages plus ou moins grandes (0 à 6800 Pa et 0 à 1000 mbar, précision : ± 0.5% pleine échelle). Lors des expériences de colmatage, le débit volumique est contrôlé par des tuyères soniques et mesuré par un débitmètre massique (4100, TSI) relié à la même centrale d'acquisition que les capteurs de perte de charge. Les deux tuyères choisies permettent des débits de 15 $l.min^{-1}$ et 5,6 $l.min^{-1}$.

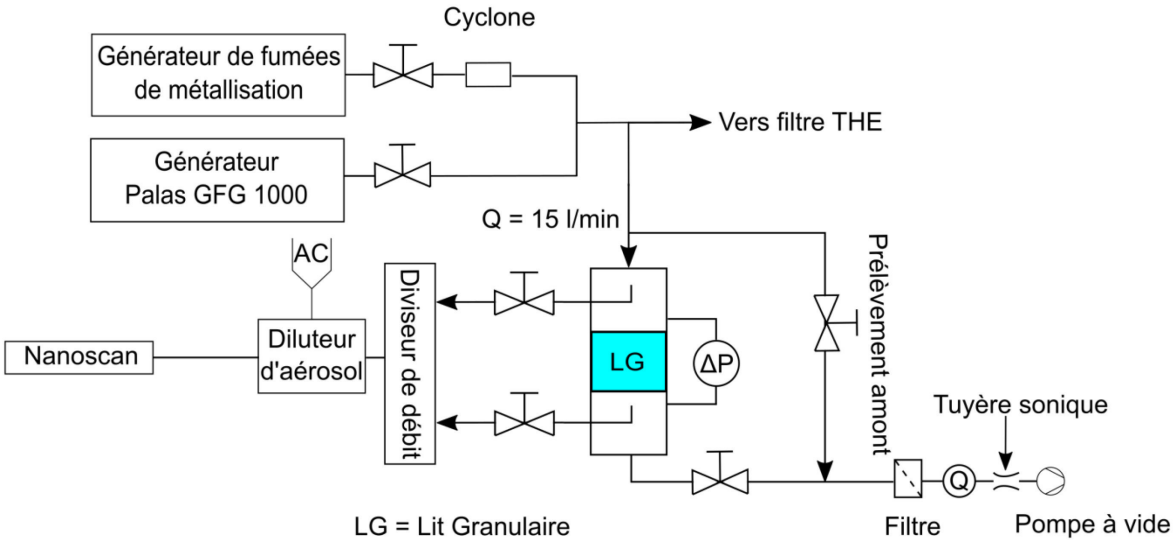


Figure II-4 Montage expérimental pour le suivi du colmatage de lits granulaires par des nanoparticules

Afin de connaître l'évolution de l'efficacité en cours de colmatage, les distributions granulométriques en nombre de l'aérosol en amont et en aval du lit granulaire ont été mesurées par un granulomètre de type SMPS (Nanoscan 3910, TSI) après dilution par un facteur 100 (Palas, VKL100). La sélection du flux d'aérosol à analyser a été effectuée par l'intermédiaire d'un diviseur de débit précédé de 2 vannes, chacune reliée à l'amont ou à l'aval du lit granulaire. L'analyseur Nanoscan permet de réduire le temps d'acquisition d'une distribution granulométrique à 1 minute au lieu de 2 dans le cas du SMPS ayant servi à la caractérisation des aérosols décrite précédemment. Cette réduction du temps de mesure a notamment permis d'améliorer la résolution temporelle du suivi du colmatage des lits granulaires. Cette amélioration se fait cependant au détriment de la résolution des distributions puisque le nombre de canaux de mesure, i.e. de classes granulométriques, est de seulement 13 pour le Nanoscan contre 64 pour le SMPS utilisé précédemment. Afin de vérifier l'impact de cette plus faible résolution, une comparaison de distributions granulométriques a été réalisée entre ces deux types de SMPS dans le cas des fumées de métallisation (Figure II-5).

La plus faible résolution du Nanoscan engendre un léger décalage du diamètre médian de la distribution granulométrique qui passe, dans cet exemple, de 78,3 nm à 86,9 nm.

Malgré cette variation, les distributions obtenues par les deux appareils sont assez proches pour garantir une résolution suffisante à la fois temporelle pour le suivi du colmatage et granulométrique. Enfin, le montage expérimental comprend un filtre de sécurité à très haute efficacité en aval du lit granulaire pour protéger le débitmètre et la tuyère des particules non-retenues. Il peut également servir à la détermination de la concentration massique totale en amont du lit granulaire par mesure gravimétrique.

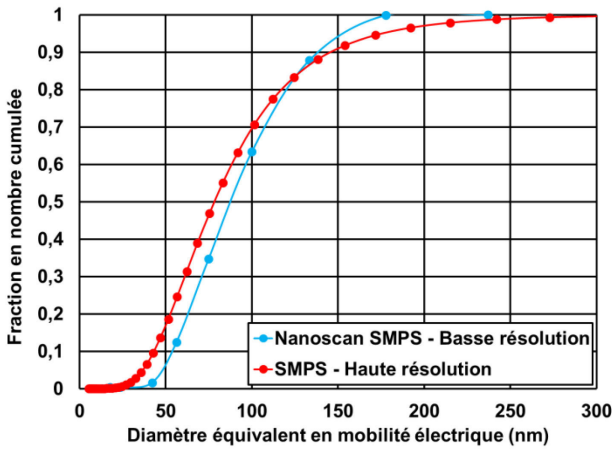


Figure II-5 Comparaison des distributions granulométriques cumulées des fumées de métallisation (Zn-Al) mesurées par le SMPS basse résolution (Nanoscan 3910, TSI) et le SMPS haute résolution (DMA 3080 + CPC 3776, TSI)

II.1.3 Méthode de suivi du colmatage des lits granulaires

Dans cette partie, une méthode de suivi du colmatage (i.e. des évolutions temporelles de l'efficacité et de la masse collectée) à partir des distributions granulométriques mesurées alternativement en amont et en aval du lit granulaire par le Nanoscan est présentée. Ces mesures séquentielles, appelées cycles, consistent en l'acquisition de trois scans de 1 minute en amont suivis de trois autres scans de 1 minute en aval du lit granulaire. La durée entre deux cycles varie en fonction de l'aérosol utilisé. Elle a été fixée à 12 minutes lors des colmatages par les fumées de métallisation et à 30 minutes lors de l'utilisation des aérosols de fer et de carbone. Cette différence de fréquence de mesure est liée aux écarts de concentration entre les fumées de métallisation et les deux autres aérosols dont résultent des cinétiques de colmatage très différentes. L'efficacité de collecte en nombre est déterminée à partir des moyennes des scans réalisés en amont et en aval des lits granulaires lors d'un même cycle. A partir de ces concentrations fractionnelles moyennes, il est tout d'abord possible de calculer l'efficacité de collecte en nombre vis-à-vis de la $i^{ème}$ classe granulométrique de particules, $E_{exp,n,i}$:

$$E_{exp,n,i} = 1 - \frac{C_{n,i,av}}{C_{n,i,am}} \qquad 1$$

Où $C_{n,i,av}$ et $C_{n,i,am}$ sont respectivement les concentrations fractionnelles en nombre mesurées en aval et en amont du lit granulaire. Pour calculer la masse collectée à chaque pas de temps, ces concentrations fractionnelles en nombre doivent tout d'abord être converties en leurs équivalents massiques.

Pour une taille de particules donnée, la concentration massique peut être calculée en appliquant :

$$C_{m,i} = \frac{\pi * \rho_p}{6} * C_{n,i} * d_{v,i}^3 \qquad 2$$

Où $C_{n,i}$ est la concentration fractionnelle en nombre mesurée, ρ_p est la masse volumique du matériau brut à partir desquels les particules ont été générées (5740 kg/m^3 pour le zinc-aluminium, 2250 kg/m^3 pour le carbone and 7870 kg/m^3 pour le fer) et d_v est le diamètre équivalent en volume des particules.

Le diamètre équivalent en volume d'une particule nanostructurée peut être calculé en utilisant la relation suivante (DeCarlo et al. 2004) :

$$d_v = d_{me} * \left(\frac{\rho_e}{\rho_p}\right)^{\frac{1}{3}} \quad 3$$

Où d_{me} est le diamètre équivalent en mobilité électrique des particules mesuré par le Nanoscan et ρ_e est la masse volumique effective des particules représentant le ratio entre la masse réelle d'une particule et le volume de sa sphère équivalente en mobilité électrique.
Des corrélations empiriques sont disponibles dans la littérature afin de calculer les masses volumiques effectives des particules nanostructurées pour les trois aérosols utilisés dans cette étude. Ces corrélations ont été développées en utilisant un classifieur électrostatique en série avec un APM (Aerosol Particles Mass Analyser) permettant d'obtenir indirectement la masse de particules ayant été préalablement sélectionnées selon leur diamètre équivalent en mobilité électrique. Ces deux grandeurs sont reliées à la masse volumique effective par (DeCarlo et al. 2004) :

$$\rho_e = \frac{6}{\pi} * \frac{m_p}{d_{me}^3} \quad 4$$

Où m_p est la masse d'une particule. En utilisant l'équation 4 et en balayant une large gamme de diamètres équivalent en mobilité électrique, les corrélations ci-dessous ont été obtenues pour chaque matériau (Charvet et al. 2014; Charvet et al. 2015) :

$$\rho_{e,carbone} = 20135 * d_{me}^{-1.02} \quad 5$$

$$\rho_{e,Zn-Al} = 40238 * d_{me}^{-0.912} \quad 6$$

$$\rho_{e,fer} = 10858 * d_{me}^{-0.807} \quad 7$$

Il convient de préciser que le diamètre équivalent en mobilité électrique est exprimé en nanomètres dans ces équations pour une densité effective calculée en kg/m^3.
Une fois les concentrations fractionnelles massiques en amont, $C_{m,i,am}$, et en aval, $C_{m,i,av}$, du lit granulaire connues pour chaque cycle de mesure, les efficacités massiques fractionnelles, $E_{exp,m,i}$, peuvent être calculées par :

$$E_{exp,m,i} = 1 - \frac{C_{m,i,av}}{C_{m,i,am}} \quad 8$$

Si, d'après la Figure II-5, les distributions granulométriques exprimées en termes de fractions numériques fournies par le Nanoscan sont très proche de celles mesurées par le SMPS haute résolution et donc suffisamment précises, ce n'est toutefois pas le cas en termes de nombre absolu de particules de chaque classe. En effet, les imprécisions liées à la faible résolution du Nanoscan ainsi qu'au système de dilution ne permettent pas de connaitre la véritable concentration en nombre et donc en masse de chaque classe granulométrique. Pour s'affranchir de ce biais, la concentration massique totale réelle en amont du lit granulaire, $C_{m,f}$, est déterminée à partir de prélèvements sur filtres grâce au by-pass contournant le lit granulaire. La masse de particules déposée est mesurée par pesée des filtres avant et après le prélèvement (Mettler Toledo AT21 pour l'aérosol de ZnAl, Sartorius BP221S pour les aérosols de carbone et fer). Connaissant $C_{m,f}$, les véritables concentrations massiques de chaque classe granulométrique en amont du lit granulaire, $C_{m,i,am,réel}$ peuvent alors être calculée en supposant que l'erreur commise par le Nanoscan est identique pour chaque canaux de mesure :

$$C_{m,i,am,réel} = \frac{C_{m,i,am}}{\sum_{i=1}^{n} C_{m,i,am}} \cdot C_{m,f} \quad 9$$

Finalement, la masse totale collectée, $m_{P,T}$, à chaque cycle (i.e., pendant un temps dt) peut être déterminée par :

$$m_{p,T} = Q \cdot dt \cdot \sum_{i=1}^{n} C_{m,i,am,réel} \cdot E_{exp,m,i} \qquad 10$$

Où Q est le débit volumique.
A partir des efficacités fractionnelles massiques, l'efficacité massique totale, $E_{m,T}$, est donnée par l'équation :

$$E_{m,T} = \sum_{i=1}^{n} \frac{C_{m,i,am}}{\sum_{i=1}^{n} C_{m,i,am}} \cdot E_{exp,m,i} \qquad 11$$

En appliquant cette méthode, il est ainsi possible de suivre l'évolution de l'efficacité massique de collecte d'un lit granulaire en fonction de la masse collectée pendant un colmatage entier. La perte de charge mesurée en continu (toutes les 10 secondes) peut être également reliée à la masse collectée grâce à l'équation 10 reliant cette dernière à la durée de colmatage.

II.2 Résultats expérimentaux

II.2.1 Récapitulatif des conditions expérimentales

Les expériences de colmatage de lits granulaires ont été réalisées pour six configurations différentes (Tableau II-2) permettant d'étudier l'influence sur la cinétique de colmatage de certains paramètres clés tels que : le nature chimique et la taille des particules, la vitesse superficielle et le diamètre des collecteurs.

Tableau II-2 Configurations expérimentales utilisées lors des colmatages de lits granulaires

Numéro d'expériences (ID)	Matériau des particules	Vitesse superficielle (cm/s)	Diamètre équivalent en mobilité électrique médian (nm)	Diamètre des collecteurs (mm)	Concentration massique (mg/m^3)
1	Zn-Al	19,89	78,3	0,5	72,86
2 (a/b/c)	Zn-Al	19,89	78,3	1	79,29 / 72,47 / 62,02
3	Zn-Al	19,89	78,3	1,6	91,8
4	Zn-Al	7,49	78,3	0,5	109,19
5	Carbone	19,89	61,6	0,5	1,83
6	Fer	19,89	46,1	0,5	0,41

D'après Gutfinger et Tardos (1979), l'impaction inertielle devient significative pour des nombres de Stokes supérieurs à environ 0,05. Ce nombre (équation 12) correspond au rapport entre la distance d'arrêt de la particule et une longueur caractéristique de l'obstacle contourné par l'écoulement, i.e. le diamètre d'un collecteur dans notre cas.

$$St = \frac{\rho_p Cu U d_p^2}{18 \mu d_c} \qquad 12$$

Avec ρ_p la masse volumique du matériau constitutif des particules, U la vitesse superficielle de l'air, μ sa viscosité dynamique, d_p le diamètre des particules, d_c celui des collecteurs et Cu le coefficient de

Cunningham. Ce coefficient est un facteur qui prend en compte les discontinuités du milieu lorsque la taille des particules est proche du libre parcours moyen des molécules du gaz :

$$\mathrm{Cu} = 1 + \mathrm{Kn}\left(\mathrm{A} + \mathrm{B}\exp\left(-\frac{\mathrm{C}}{\mathrm{Kn}}\right)\right) \qquad 13$$

Où A, B, C sont des constantes qui peuvent prendre différentes valeurs selon les auteurs. Elles donnent cependant des résultats très proches. On peut citer par exemple celles données par Kim (Kim et al. 2005): A=1,165, B=0,483, C=0,997. Kn est le nombre de Knudsen exprimant le rapport entre le libre parcours moyen des molécules, ι, et le diamètre des particules :

$$\mathrm{Kn} = \frac{2\iota}{\mathrm{d_p}} \qquad 14$$

Le phénomène d'interception directe devient quant à lui significatif pour des valeurs de paramètre d'interception, R, supérieures à 0,002. R est défini comme le rapport des diamètres des particules et des collecteurs :

$$\mathrm{R} = \frac{\mathrm{d_p}}{\mathrm{d_c}} \qquad 15$$

Toujours d'après Gutfinger et Tardos (1979), les valeurs de ces nombres adimensionnels données dans le Tableau II-3 étant inférieures aux seuils donnés précédemment, les collectes par interception et impaction inertielle sont négligeables dans cette étude en comparaison de celle se faisant par diffusion brownienne. L'intensité de ce mécanisme est gouvernée par l'importance relative du mouvement diffusif par rapport au mouvement convectif du gaz porteur. Ce rapport est exprimé par le nombre de Péclet :

$$\mathrm{Pe} = \frac{\mathrm{Ud_c}}{\mathrm{D_{Br}}} \qquad 16$$

Avec D_{Br} le coefficient de diffusion brownienne :

$$\mathrm{D_{Br}} = \frac{\mathrm{k_B TCu}}{3\pi\mu\mathrm{d_p}} \qquad 17$$

Avec k_B la constante de Boltzmann, T la température en Kelvin.

Tableau II-3 Nombres adimensionnels correspondants aux expériences réalisées

ID.	Diamètres particules (nm)	Diamètres collecteurs (mm)	Paramètre d'Interception (R)	Nombre de Stokes	Nombre de Péclet
1	78,3	0,5	$1{,}5\times10^{-4}$	$1{,}4\times10^{-4}$	$9{,}7\times10^{4}$
2	78,3	1	$7{,}8\times10^{-5}$	$7{,}2\times10^{-5}$	$1{,}9\times10^{5}$
3	78,3	1,6	$4{,}9\times10^{-5}$	$4{,}5\times10^{-5}$	$3{,}1\times10^{5}$
4	78,3	0,5	$1{,}5\times10^{-4}$	$5{,}4\times10^{-3}$	$3{,}7\times10^{6}$
5	61,6	0,5	$1{,}2\times10^{-4}$	$4{,}3\times10^{-5}$	$6{,}3\times10^{4}$
6	46,1	0,5	$9{,}2\times10^{-5}$	$1{,}1\times10^{-4}$	$3{,}7\times10^{4}$

Bien que la définition du nombre de Péclet suggère que ce dernier devrait être théoriquement inférieur à 1 lorsque le transport par diffusion est le seul mécanisme significatif, on remarque dans le

Tableau II-3 que ce n'est toutefois pas le cas. En effet, le nombre de Péclet apparait être au moins égal à $3{,}7 \times 10^4$ pour les différents types de particules ultrafines. Ceci est lié au fait que les coefficients de diffusion de PUF dans un gaz sont très faibles ($\approx 10^{-10}$ m²/s) en comparaison de ceux rencontrés dans des problématiques classiques de diffusion moléculaire ($\approx 10^{-5}$ m²/s). En conséquence, ces valeurs élevées du nombre de Péclet couplées aux faibles valeurs du nombre de Stokes et du paramètre d'interception rendent compte du fait que le seul mécanisme participant significativement à la collecte des particules est bien la diffusion brownienne mais que la convection assure tout de même la majeure partie du déplacement des particules au travers du lit granulaire.

II.2.2 Validation du protocole expérimental

Une procédure a été mise en place afin de vérifier la validité du protocole expérimental. Cette procédure permet de valider au moyen d'un bilan de matière les mesures d'efficacité et les valeurs de masse collectées qui en découlent.
Le temps de colmatage, le débit volumique et la concentration massique de l'aérosol étant connus, la masse de particules pénétrant dans le lit granulaire peut être obtenue par :

$$m_{p,am} = Q \cdot t \cdot C_{m,f} \qquad 18$$

Où t est la durée totale du colmatage. Si le protocole est valide alors les masses entrante, collectée (calculée par la méthode décrite précédemment) et sortante (connue par mesure gravimétrique) devraient alors satisfaire l'équation suivante :

$$m_{p,am} = m_{p,c} + m_{p,av} \qquad 19$$

Avec $m_{p,c}$ et $m_{p,av}$ les masses de particules collectée et sortante du lit granulaire sur toute la durée du colmatage, respectivement. L'écart entre le terme de gauche et de droite de l'équation 19 est donné dans le tableau suivant pour les expériences 1, 2 (a, b, c), 3, 4, 5 et 6 :

Tableau II-4 Résultats de la validation du protocole expérimental par bilan de matière

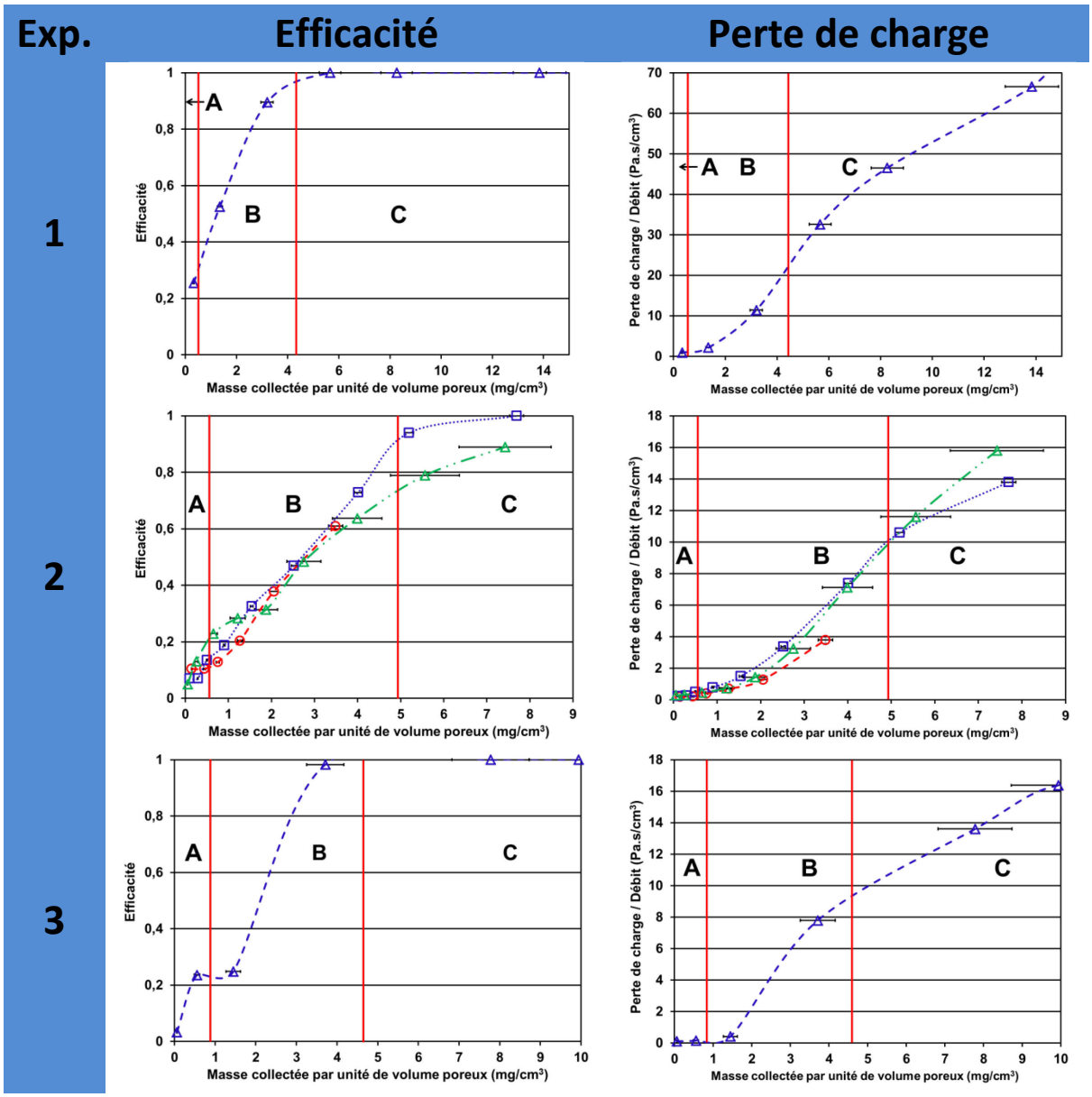
ID	Masse entrante (mg)	Masse collectée (mg)	Masse sortante (mg)	Ecarts (%)
1	116,56	100,22	25,03	7,45
2a	95,61	18,03	73,05	4,73
2b	128,57	54,31	76,56	2,08
2c	102,42	38,25	49,44	14,37
3	166,52	130,31	59,46	12,25
4	40,72	29,88	12,92	5,12
5	20,73	13,66	10,37	15,92
6	18,92	18,07	-	4,52

La balance utilisée pour les mesures gravimétriques (concentration et masse sortante) ayant une très bonne précision (± 0,008 mg pour Mettler Toledo AT21 (ZnAl) et ±0,2 mg (Fer et Carbone)), les écarts présentés dans le Tableau II-4 semblent donc majoritairement dus au protocole de détermination de la masse collectée. Sur la base de ce constat, ces écarts peuvent donc être considérés sans trop d'erreur comme étant représentatif de l'incertitude sur la masse collectée introduite par le protocole. Cette dernière étant au maximum d'environ 15 % et dans la plupart des cas inférieure à 10%, ces bilans de matière tendent à prouver la fiabilité de notre protocole expérimental pour la détermination de la masse collectée par des lits granulaires lors de colmatages par des aérosols de nanoparticules.

A noter que pour l'expérience sur l'aérosol de fer (expérience 6), la masse sortante n'a pas pu être déterminée du fait d'une trop faible variation de masse par rapport à celle du filtre vierge compte tenu de la précision de la balance utilisée (±0,2 mg). En effet, ces particules étant les plus fines, leur masse est très faible et leur collecte par diffusion brownienne importante (environ 70 % initialement).

II.2.3 Evolution de l'efficacité de collecte et de la perte de charge

Les résultats des expériences réalisées dans les conditions décrites précédemment, sont présentés dans cette partie et analysés afin d'obtenir plus d'informations sur la cinétique de colmatage des lits granulaires par des nanoparticules. Ces informations doivent contribuer au développement d'un outil de prédiction de l'évolution de l'efficacité et de la perte de charge au cours du colmatage. Les résultats expérimentaux sont présentés par paire efficacité/perte de charge pour chacune des configurations expérimentales utilisées (Figure II-6). On notera que, pour l'expérience 2, trois courbes sont représentées sur la Figure II-6 correspondant à la répétition de cette expérience comme explicité dans la Tableau II-2.



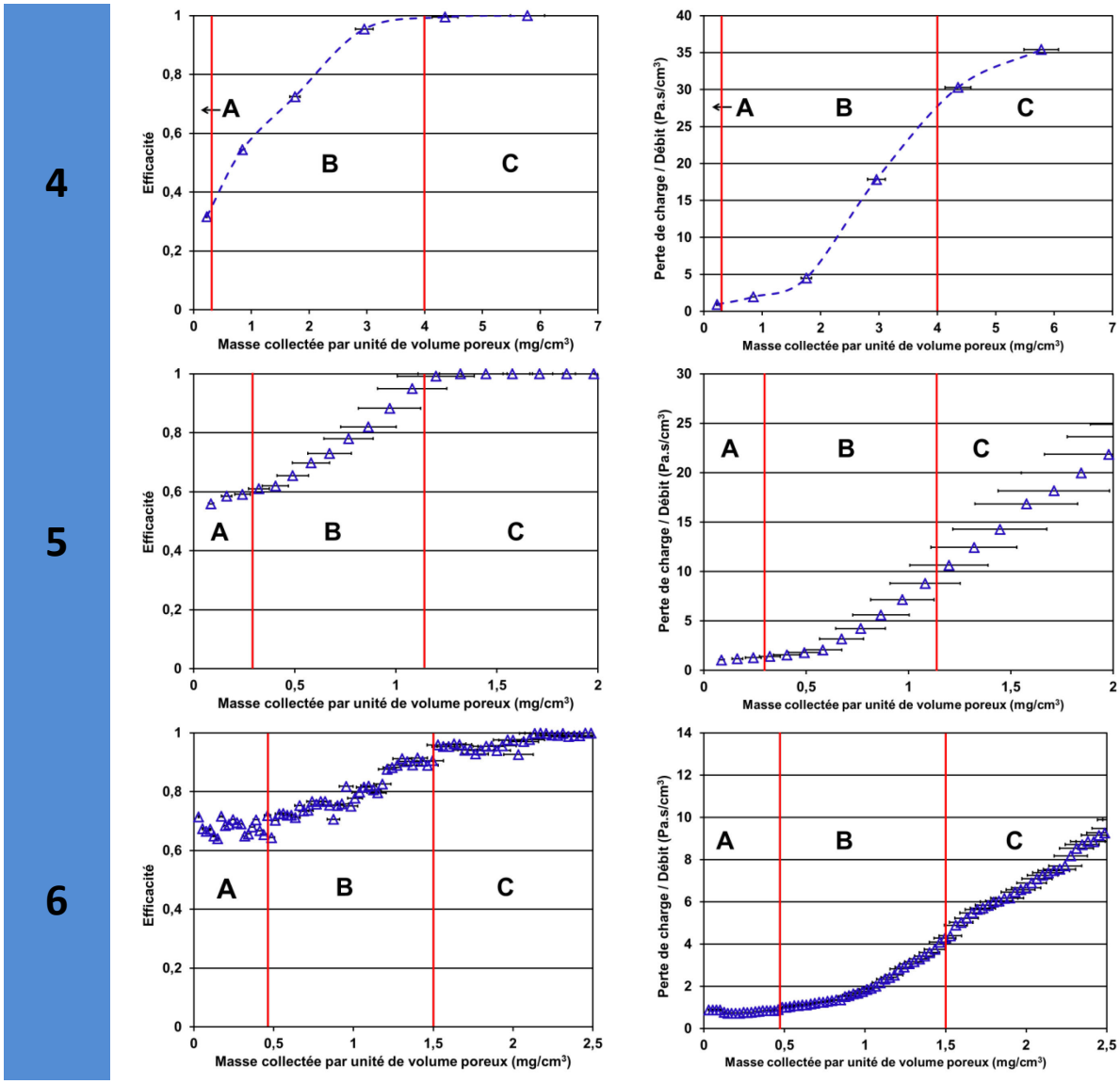


Figure II-6 Résultats expérimentaux d'évolution d'efficacité et de perte de charge pour chaque configuration (ID 1 à 6)

D'après ces résultats expérimentaux, il apparait que la filtration des nanoparticules par lit granulaire peut schématiquement se diviser en trois phases (A, B, C) indépendamment de la taille des collecteurs, de la nature des particules ou de la vitesse superficielle.

Durant la phase A, la perte de charge et l'efficacité présentent une faible évolution. Ceci semble donc indiquer que le dépôt formé durant cette période ne modifie pas ou peu la structure interne du lit granulaire en termes de porosité, de taille ou encore de forme des collecteurs. La vitesse dans les pores, i.e., interstitielle, n'est par conséquent pas significativement augmentée par une réduction de leur section non-obstruée. La durée de cette première phase, en termes de masse collectée, est variable et dépend à l'échelle d'un pore de la fraction de son volume initial occupée par le dépôt. La masse déposée critique provoquant le passage à la phase B devrait donc être fonction du diamètre initial des collecteurs, dont dépend directement celui des pores, de la vitesse interstitielle ainsi que du diamètre et de la masse volumique des particules. La vitesse interstitielle est importante à prendre en compte car elle influence en partie la porosité du dépôt en surface des collecteurs et par conséquent son volume (Thomas et al. 2014). Enfin, il est également intéressant de constater que dans une minorité de cas (expériences 2c et 4) l'évolution de l'efficacité se fait suivant un autre schéma comportant une 4ème phase.

En effet, il semble que dans ces cas les trois phases A, B et C soient très brièvement précédés d'une période de forte croissance initiale de l'efficacité, n'impactant en revanche pas l'évolution de la perte de charge. Bien qu'aucune explication ne puisse être définitivement donnée, le fait que cette augmentation momentanée d'efficacité n'engendre pas de croissance de la perte de charge permet de faire l'hypothèse que ce phénomène est ponctuel et lié à un point de mesure anormalement élevé. La résolution temporelle des mesures d'efficacité sur les expériences ne permet cependant pas de comparer ce point de mesure avec d'autres enregistrés directement après et représentant un état de colmatage quasi-identique. La présence de fluctuations significatives dans les mesures d'efficacité entre deux états de colmatage quasi-identiques est par ailleurs particulièrement visible dans le cas de l'expérience 6 dont la résolution en termes de masse collectée est très bonne du fait de la faible concentration de l'aérosol de fer utilisé.

Lors de la seconde phase (B), la perte de charge et l'efficacité augmentent brusquement et de façon simultanée. Ce comportement traduit l'impact du dépôt sur la structure interne du lit granulaire. En effet, les particules déposées y jouent le rôle de collecteurs additionnels améliorant l'efficacité de filtration mais engendrant également une plus grande résistance à l'écoulement avec une augmentation de la vitesse interstitielle. L'une des principales caractéristiques d'un dépôt de nanoparticules étant une très grande surface spécifique, il est probable que ce comportement soit lié à une forte augmentation de la surface spécifique des collecteurs par accumulation de dépôt conjointe à une réduction de la surface libre des pores. A titre d'exemple, la surface spécifique mesurée par la méthode BET des fumées de métallisation utilisées dans cette étude est de 78 m^2/g soit $4{,}48 \times 10^8$ m^2/m^3.

La troisième phase est quant à elle marquée par une efficacité très proche 1 et par une croissance linéaire de la perte de charge. Au-delà de ces deux caractéristiques, la transition entre la phase B et la phase C est marquée par une inflexion de l'augmentation de la perte de charge ainsi que par l'apparition de fluctuations plus ou moins importantes de cette dernière. Ce comportement est montré en exemple sur la Figure II-7 représentant l'évolution temporelle de l'efficacité et de la perte de charge dans les conditions de l'expérience 1.

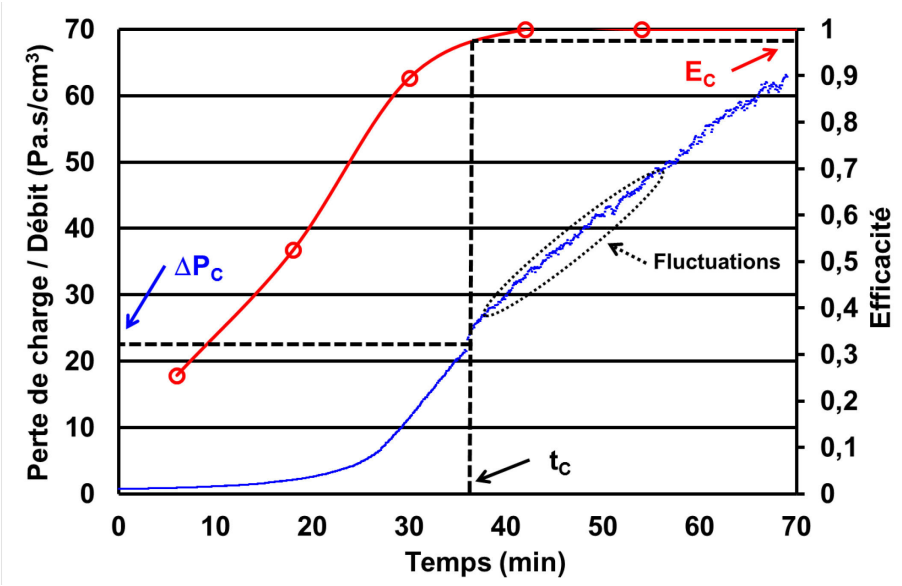


Figure II-7 Evolutions temporelles de l'efficacité et de la perte de charge lors de l'expérience 1 et détermination des différentes grandeurs à la transition entre la phase B et la phase C

La durée d'un cycle de mesure étant constant et l'efficacité étant proche de 1 à la fin de la phase B, la masse collectée entre deux points de mesure est importante, entrainant ainsi une plus faible résolution massique à des degrés de colmatage avancés. Dans le cas de colmatage par des fumées de métallisation fortement concentrées, cette baisse de résolution permet ainsi difficilement une lecture directe du début de la phase C à partir des courbes d'évolution massique de perte de charge et d'efficacité. Afin de s'affranchir de ce problème, des représentations d'évolutions temporelles similaires à celles présentées sur la Figure II-7 peuvent être utilisées. En effet, ces dernières présentent une meilleure résolution avec une mesure de perte de charge effectuée toutes les 10 secondes. La méthode utilisée pour la détermination complète du début de la phase C est la suivante :

(1) Lecture de la perte de charge au début de la phase C (ΔP_C), i.e., au temps t_C, en se basant sur les marqueurs cités précédemment : Point d'inflexion de la courbe d'évolution temporelle de la perte de charge, croissance linéaire de cette dernière et augmentation des fluctuations des valeurs de perte de charge (Figure II-7).

(2) Lecture de l'efficacité de collecte au début de la phase C (E_C), i.e., au temps t_C sur la courbe d'évolution temporelle de cette dernière (Figure II-7).

(3) Détermination de la masse collectée (m_C) correspondante à ΔP_C sur les courbes d'évolution massique de perte de charge (Figure II-6).

(4) L'efficacité E_C peut aussi être obtenue à partir des courbes d'évolution massique d'efficacité (Figure II-6) après avoir déterminé m_C à l'étape (3).

Compte tenu des incertitudes pouvant impacter les valeurs de masse collectée (Tableau II-4), il a pu être observé, en adoptant cette démarche, que le début de la phase C correspond au point de colmatage engendrant une efficacité de collecte de quasiment 100%, ce qui est par ailleurs cohérent avec l'évolution linéaire de la perte de charge. En effet, ce comportement correspond habituellement dans les problématiques de filtration à un écoulement à travers une couche de dépôt uniforme et d'efficacité d'environ 100%, i.e., un gâteau de particules, formée en surface d'un filtre. Il existe néanmoins certaines différences entre l'évolution du dépôt durant la phase C et la croissance d'un gâteau. Cette différence est notamment visible grâce à la Figure II-8 – 4 montrant que l'évolution linéaire de la perte de charge durant la phase C ne correspond pas à celle prédite par le modèle de Thomas et al. (2014) s'appliquant aux gâteaux de nanoparticules. Cette divergence pourrait être partiellement attribuée à l'état de surface du substrat sur lequel croît le dépôt. En effet, la profondeur des irrégularités en surface d'un lit granulaire est, du fait de la taille des collecteurs (de l'ordre du millimètre), plus importante que celle des médias fibreux communément utilisés dont le diamètre des fibres est de l'ordre de quelques micromètres. De plus, le profil de pénétration étant décroissant avec la profondeur dans le cas de nanoparticules, les premières couches des lits granulaires sont les plus colmatées et présentent donc les efficacités de collecte les plus hautes (Bémer et al. 2013) (Figure II-8 – 1). Ces deux éléments conjugués à l'hypothèse d'un dépôt sphérique uniforme autour des collecteurs dans le cas de nanoparticules (Kanaoka et al., 1986) pourraient alors engendrer, au début de la phase C, la fermeture simultanée des pores de la première strate de collecteurs par la jonction dans leur plan médian ($Z = z_m$) d'enveloppes sphériques de dépôt (Figure II-8 – 2a, Figure II-8 – 3). Cette étape laisserait alors place à la croissance de gâteaux « interstitiels » générant une augmentation linéaire de la perte de charge en fonction de la masse totale collectée moins soutenue que celle prédite par les modèles théoriques.

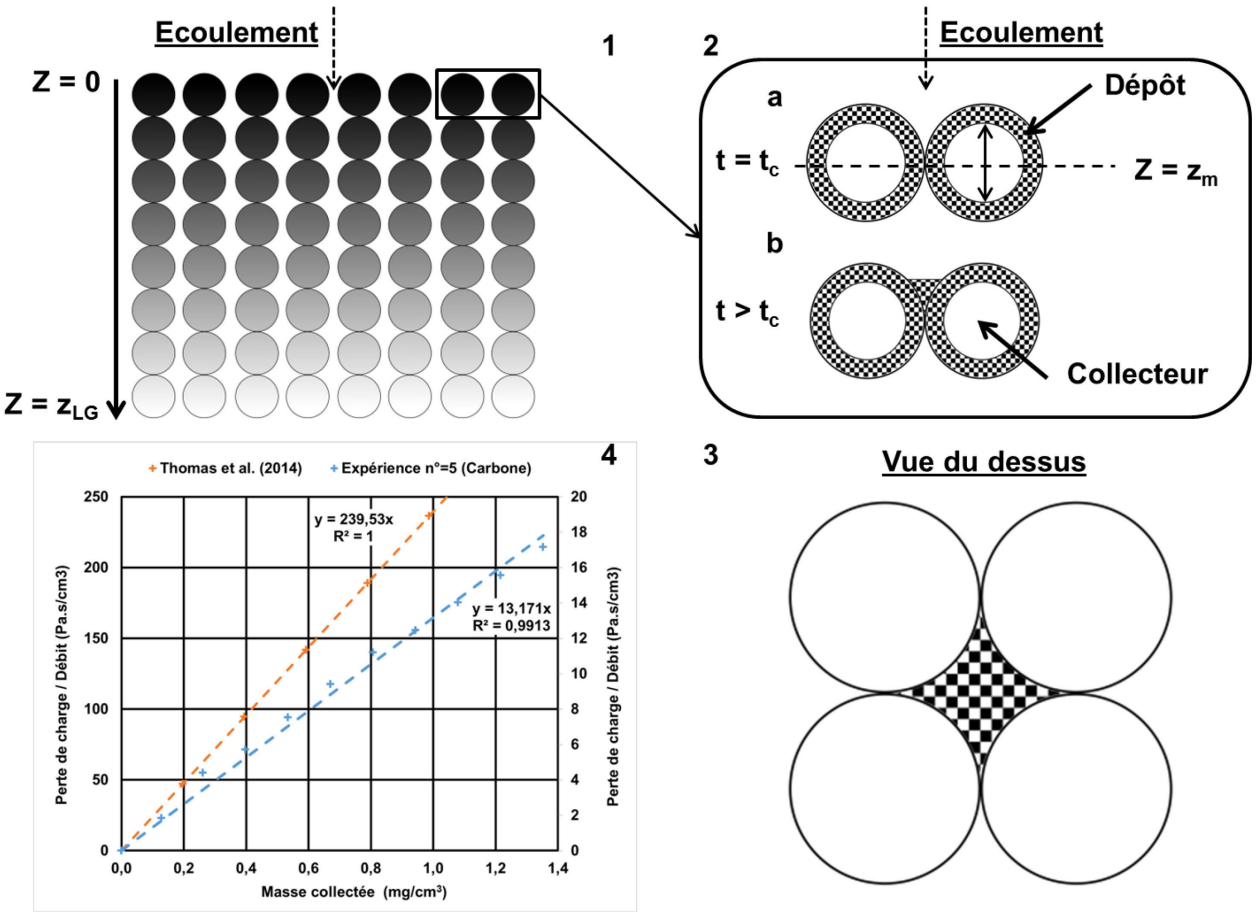


Figure II-8 Représentations schématiques du colmatage d'un lit granulaire au début de la phase C (1,2,3) / Comparaison des pentes d'évolution de la perte de charge entre la phase C et le modèle de Thomas et al. (2014) (4)

Cette évolution moins soutenue de la perte de charge pourrait être due au fait que, dans le cas d'un lit granulaire, toute la masse collectée durant la phase C ne contribue pas à la croissance des gâteaux interstitiels. En effet, les particules étant soumises à la diffusion brownienne, elles se déposent également sur les surfaces supérieures des collecteurs formant des épaisseurs de dépôt traversées par un très faible débit du fait d'une très grande résistance aéraulique en comparaison des zones libres en entrée de pore. Ainsi, une même masse collectée correspond à une épaisseur de gâteau plus faible dans la réalité que celle calculée lors de l'utilisation des modèles et donc à une perte de charge plus faible. Ces hypothèses semblent par ailleurs confirmées par des observations au microscope de la surface de lits granulaires en fin de colmatage (Figure II-9) montrant l'absence d'un gâteau se développant au-dessus des collecteurs. Il est également possible d'observer la présence d'une « nappe » de dépôt dans la profondeur de la première strate de pore correspondant aux gâteaux interstitiels définis précédemment.

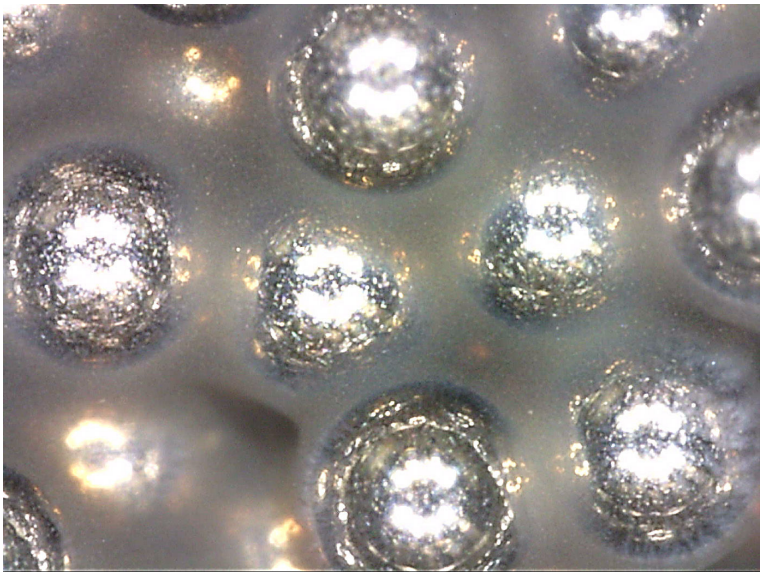


Figure II-9 Observation au microscope de la surface d'un lit granulaire durant la phase C (Fin de l'expérience n°=1)

Cette image prise à la fin de l'expérience 1 présente l'état de colmatage le plus avancé en termes de perte de charge et de masse collectée, il apparait que le stade d'un gâteau recouvrant uniformément toute la section du lit granulaire ne soit pas atteint durant ces expériences. Ceci peut s'expliquer par le phénomène de débouchage ponctuel de pores complètement obstrués. En effet, à cause de l'augmentation de la perte de charge, certains pores peuvent être amenés à se déboucher puis à se refermer quasi-instantanément du fait de l'augmentation du débit les traversant. Dans le cas où ce phénomène se produirait continuellement à partir d'une certaine valeur de perte de charge, cela ralentirait considérablement la croissance des gâteaux interstitiels au-delà d'une certaine épaisseur puisqu'une majorité de la masse collectée servirait à obstruer à nouveau les pores libres ainsi qu'à localement colmater les couches de colleteurs situées directement en aval. Le débouchage des pores est par exemple visible à un autre endroit de la surface du lit granulaire représenté sur la Figure II-9 (Figure II-10).

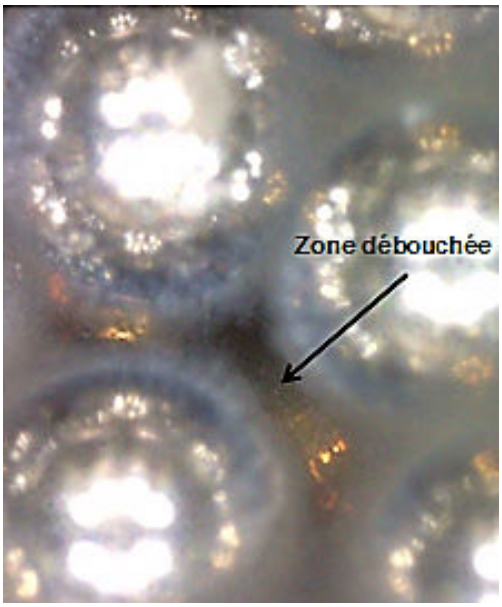


Figure II-10 Observation au microscope d'une zone de la surface d'un lit granulaire temporairement débouchée pendant la phase C (Fin de l'expérience n°=1)

Ces différentes hypothèses présentées précédemment sur l'allure des courbes d'évolution de perte de charge semblent par ailleurs conforter par d'autres études de la littérature (Wu et al. 2005; Kuo et al. 2010). En effet, Kuo et al. (2010) ont pu visuellement observer les perforations du dépôt ainsi que la diminution de la perte de charge en résultant. Wu et al. (2005) ont quant à eux étudié le colmatage (i.e., l'évolution de la perte de charge) de lits granulaires par des particules de cendre de 1,1 µm jusqu'à la formation d'un gâteau de particules dans les couches superficielles de collecteurs. Bien que concernant des particules fines et non ultrafines, cette étude présente un certain nombre de similitudes au niveau des résultats et de leurs interprétations. Ainsi, les auteurs font également état d'un colmatage en trois phases dont les définitions sont semblables à celles présentées dans ce chapitre. De plus, le début de la dernière phase est également caractérisé par un point d'inflexion de la courbe de perte de charge en fonction de la masse collectée à partir duquel cette dernière croît linéairement. Cette convexité de la courbe de perte de charge au début de la troisième phase est par ailleurs à nouveau attribuée à un phénomène de perforations du dépôt en surface sous l'effet de la pression.

II.3 Conclusions

Un montage expérimental a été développé afin de suivre l'évolution du colmatage de lits granulaires par des aérosols de nanoparticules. Ce montage a permis d'obtenir l'évolution de l'efficacité de collecte et de la perte de charge en fonction de la masse de particules collectées pour plusieurs diamètres de collecteur (0,5, 1 et 1,6 mm), pour trois différentes natures et tailles de nanoparticules (Fer, Carbone et Zinc-Aluminium) ainsi que pour deux vitesses superficielles (7,49 et 19,89 cm/s). Un colmatage en trois étapes a pu être mis en évidence. Ce colmatage comporte notamment deux phases (A et B) de filtration en profondeur durant lesquelles la perte de charge et l'efficacité évoluent très peu puis augmentent très fortement. Des hypothèses ont été avancées afin d'expliquer les phénomènes régissant ces deux premières étapes. Durant la phase A, la faible évolution des performances semble liée au fait que le dépôt n'obstrue pas significativement les pores et donc que la structure interne du lit granulaire demeure inchangée. Concernant la phase B, les brusques augmentations conjuguées de la perte de charge et de l'efficacité pourraient correspondre une réduction significative de la section des pores ainsi qu'à une augmentation de la surface spécifique du milieu poreux sous l'effet de l'accumulation des nanoparticules. La troisième phase (C) voit quant à elle la perte de charge augmenter linéairement à partir du moment où l'efficacité du lit granulaire atteint une valeur proche de 100%, indiquant ainsi la fin de la phase de filtration en profondeur et la formation d'un gâteau de particules en surface. En comparant la pente des modèles de perte de charge de gâteaux de nanoparticules avec celle obtenue expérimentalement, il a pu être observé que cette évolution linéaire ne correspondait pas à la phase de filtration en surface habituellement rencontrée lors d'expérience sur des médias fibreux. Sur la base d'un raisonnement schématique confirmé par des observations aux microscopes et des études de la littérature, il apparait que cette différence d'évolution de perte de charge est liée à la formation de gâteaux interstitiels dans les pores de la première strate de collecteurs et non à celle d'un gâteau d'épaisseur uniforme au-dessus de ces derniers. Enfin, il semble également grâce à ces observations que ce dernier type de gâteaux ne soit jamais formé durant nos expériences et qu'un tel stade de colmatage serait difficilement atteignable du fait du débouchage continuel de pores préalablement obstrués au-delà d'une certaine perte de charge.

Ces expériences ont permis de mieux appréhender le comportement macroscopique des lits granulaires en cours de colmatage. Les résultats obtenus dans de multiples configurations devront permettre aux travaux réalisés dans la suite de cette étude de posséder la plus large assiette possible. Ceci est d'autant plus important que l'un des principaux objectifs réside dans le développement d'un outil prédictif du comportement de lits granulaires en cours de colmatage. En effet, cet outil doit être capable de représenter des cas généraux et être valable indépendamment de la variation des principaux paramètres opératoires.

Références

Bémer, D., I. Subra, Y. Morele, A. Charvet, et D. Thomas. 2013. « Experimental study of granular bed filtration of ultrafine particles emitted by a thermal spraying process ». *Journal of Aerosol Science* 63 (septembre): 25–37.

Charvet, A., S. Bau, D. Bémer, et D. Thomas. 2015. « On the Importance of Density in ELPI Data Post-Treatment ». *Aerosol Science and Technology* 49 (12): 1263‑70.

Charvet, A., S. Bau, N. E. Paez Coy, D. Bémer, et D. Thomas. 2014. « Characterizing the Effective Density and Primary Particle Diameter of Airborne Nanoparticles Produced by Spark Discharge Using Mobility and Mass Measurements (Tandem DMA/APM) ». *Journal of Nanoparticle Research* 16 (5): 1‑11.

DeCarlo, P. F., J. G. Slowik, D. R. Worsnop, P. Davidovits, et J. L. Jimenez. 2004. « Particle Morphology and Density Characterization by Combined Mobility and Aerodynamic Diameter Measurements. Part 1: Theory ». *Aerosol Science and Technology* 38 (12): 1185–1205.

Kim, J. H., G. W. Mulholland, S. R. Kukuck, et D. Y. H. Pui. 2005. « Slip Correction Measurements of Certified PSL Nanoparticles Using a Nanometer Differential Mobility Analyzer (Nano-DMA) for Knudsen Number From 0.5 to 83 ». *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology* 110 (1): 31‑54.

Kuo, Y., S. Huang, W. Lin, M. Hsiao, et C. Chen. 2010. « Filtration and loading characteristics of granular bed filters ». *Journal of Aerosol Science* 41 (2): 223‑29.

Thomas, D., F. Ouf, F. Gensdarmes, S. Bourrous, et L. Bouilloux. 2014. « Pressure drop model for nanostructured deposits ». *Separation and Purification Technology* 138 (décembre): 144‑52.

Wu, M.S., K.-C. Lee, R. Pfeffer, et A.M. Squires. 2005. « Granular-bed filtration assisted by filter cake formation 3. Penetration of filter cakes by a monodisperse aerosol ». *Powder Technology* 155 (1): 62‑73.

III. Simulation numérique de la filtration de particules ultrafines par lits granulaires

Pour le développement et/ou l'optimisation de nouveaux produits, les industriels font aujourd'hui de plus en plus appel aux simulations numérique et à l'une de ses principales composantes, la mécanique des fluides numérique (en anglais CFD pour *Computational Fluid Dynamics*). Le principe de la mécanique des fluides numériques est de résoudre dans une géométrie donnée les équations fondamentales de la mécanique des fluides que l'on peut coupler avec celles régissant d'autres phénomènes physiques (transfert thermique, transport de particules…). La CFD repose sur plusieurs étapes : la création de la géométrie (logiciel de dessin 3D), la discrétisation de cette géométrie en éléments de faibles tailles (maillage) et enfin la résolution des équations considérées dans chacun de ces éléments afin d'obtenir une solution sur l'ensemble du domaine de calcul.
Cet outil présente plusieurs avantages pour le secteur de la recherche et du développement et plus particulièrement en génie des procédés. Il s'agit tout d'abord de la réduction des coûts puisque la CFD permet de s'affranchir d'un nombre important d'expériences souvent longues et complexes, même si une validation expérimentale de certains résultats clés est toujours nécessaire. La CFD présente également l'avantage de pouvoir recueillir, dans un temps relativement court, un grand nombre de données s'avérant souvent difficiles ou impossibles à mesurer expérimentalement. Plus spécifiquement, dans le cadre de cette étude, l'utilisation de la CFD s'inscrit dans la recherche d'un outil de prédiction de l'évolution des performances des lits granulaires en cours de colmatage par des particules ultrafines, à savoir l'évolution de l'efficacité de collecte et de la perte de charge. Dans le chapitre 2, on a vu que la résolution temporelle des mesures est limitée par la durée d'acquisition des différents appareils tels que les analyseurs SMPS (Nanoscan 3910, TSI). L'apport de la CFD pourrait notamment pallier ce type de problèmes par le calcul de ces performances à des intervalles plus restreint de temps de colmatage simulés. Au-delà de la prédiction du comportement macroscopique des lits granulaires en cours de colmatage, une approche numérique pourrait également permettre, en théorie, d'accéder à la localisation précise du dépôt (profil de dépôt dans la profondeur) ainsi qu'à sa morphologie autour des collecteurs et dans les pores. L'ensemble de ces renseignements potentiellement accessibles grâce à la simulation numérique permettrait alors d'appréhender plus finement la cinétique de colmatage des lits granulaires par des particules ultrafines et ainsi de mieux discerner les paramètres clés auxquels attacher une attention particulière pour le dimensionnement d'installations.

III.1 Etat de l'art

Les simulations numériques ont souvent été utilisées pour l'étude de phénomènes à de faibles échelles spatiales (i.e., d'un collecteur) et/ou temporelles (i.e., état initial ou configurations menant à de faibles temps de colmatage) afin d'aider au développement de modèles.
Parmi ce type d'étude figurent notamment les travaux de Shin (2006) s'intéressant à la filtration à l'état initial de particules non-brownienne par un milieu poreux composé de sphères non jointives reparties selon un arrangement régulier et présentant une porosité de 80%. En faisant varier la vitesse d'écoulement, le diamètre des particules et la viscosité cinématique du fluide (rapport de la viscosité dynamique et la masse volumique du fluide), l'auteur a pu étudier, grâce à la CFD, l'influence de paramètres tels que le nombre de Reynolds, le coefficient de trainée des particules (C_D) ou leur diamètre sur l'efficacité initiale de collecte. En résolvant, les équations de Navier-Stokes pour obtenir l'écoulement au travers du lit granulaire puis l'équation de mouvement des particules en fonction de la force exercée par le fluide sur ces dernières, l'auteur a pu notamment remarquer que

le coefficient de trainée n'a pas d'influence sur l'efficacité initiale de collecte pour des valeurs inférieures à 10. Shin a également observé que l'efficacité de collecte chute fortement pour des valeurs de C_D comprises entre 10 et 100. Enfin, l'auteur a pu retrouver certains résultats de la littérature, à savoir que pour une même configuration de lit granulaire et d'écoulement, l'augmentation du diamètre de particules non-browniennes conduit à une augmentation de l'efficacité de collecte.

Alors que les travaux de Shin avaient trait aux performances initiales d'un lit granulaire dans son ensemble, une autre approche a été mise en œuvre par Chaumeil et Crapper (2014). En effet, ces auteurs ont utilisés la simulation numérique pour étudier de façon détaillée le comportement de particules submicroniques et microniques (0,5 µm et 1 µm) transportées par un flux de liquide dans un tube à étranglement (Figure III-1). Ces tubes sont des représentations modèles des pores formés localement par un enchevêtrement de collecteurs sphériques au sein d'un lit granulaire (Payatakes 1973).

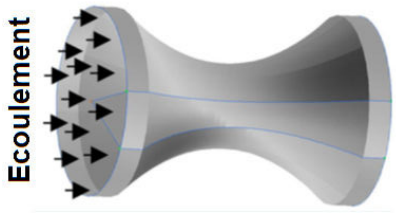


Figure III-1 Illustration d'un tube à étranglement (d'après Chaumeil et Crapper (2014))

En connaissant le nombre de tubes de ce type composant un lit granulaire, il est théoriquement possible de relier le dépôt de particules au sein d'un tube à celui dans l'ensemble du lit granulaire. Les auteurs ont ainsi réalisé ces simulations dans le but d'améliorer la modélisation des phénomènes se produisant à l'échelle d'un de ces tubes afin de prédire l'évolution des performances d'un milieu poreux entier. Ces simulations ont notamment permis d'étudier l'influence de phénomènes complexes sur la collecte des particules tels que l'agglomération des particules non-déposées, le réentrainement ou encore la collision des particules entre elles. Chaumeil et Crapper ont ainsi observé que l'efficacité de collecte d'un tube augmente avec la concentration en particules ainsi qu'avec leur diamètre. Elle décroit en revanche avec l'augmentation du débit et donc de la vitesse d'écoulement. De ce fait, il a été remarqué, en examinant la localisation des particules déposées à la fin de la simulation (i.e., lorsque toutes les particules injectées sont déposées ou sorties du tube), que ces dernières se trouvaient en majorité en aval de l'étranglement du fait de la décélération du fluide. Grâce à ces simulations, les auteurs ont par ailleurs mis en évidence que le principal paramètre influençant la collecte de ce type de particules n'est pas leur diamètre mais le rapport entre le volume total de particules dans le tube et celui de ce dernier. En effet, plus ce rapport est élevé plus l'efficacité de collecte augmente. Les auteurs ont cependant nuancé ce propos en faisant remarquer que ce phénomène est contrebalancé par l'accroissement du réentrainement d'agglomérats collectés par collisions avec d'autres non-déposés. En effet, l'augmentation du volume de particules au sein du tube conduit également à la croissance du nombre de collisions entre elles et donc à celle du nombre d'agglomérats formés. Bien qu'une telle étude fournie des renseignements utiles sur des phénomènes difficilement observables expérimentalement, il convient néanmoins de préciser que ces simulations ne concernent pas un état de colmatage avancé des tubes à étranglements du fait du faible nombre de particules injectées, i.e., 2000 ou 5000.

Alors que les travaux présentés jusqu'à maintenant concernent l'utilisation de la simulation numérique pour l'étude de l'état initial de la filtration en profondeur, certains auteurs ont cherché à simuler le colmatage de milieu poreux dans sa totalité dans des conditions particulière nécessitant des temps de calcul pas trop important. C'est notamment le cas de Natsui et al. (2012) qui ont étudié le colmatage de lits granulaires composés de collecteurs de 4,4 mm de diamètre par des aérosols de particules de diamètre compris entre 0,388 mm et 0,596 mm. Le faible ratio entre la taille des collecteurs et celle des particules, i.e., jamais supérieur à 11,34, permet aux auteurs d'obtenir un état de colmatage significatif au bout d'un faible temps réel à simuler (1,5 s). En effet, dans cette configuration, les pores du lit granulaire se retrouvent très rapidement obstrués au niveau de leur étranglement. Cette faible durée de colmatage permet alors de ne calculer la trajectoire que d'un nombre réduit de particules i.e., inférieur 1,4 millions par simulation. Grâce à ces travaux, les auteurs ont pu notamment observer qu'une large fraction des particules reste localisée à l'entrée du lit granulaire sous la forme d'agglomérats qui se développent au fur et à mesure du colmatage. Ce phénomène semble par ailleurs accentué par l'augmentation du diamètre des particules, les particules les plus fines pénétrant plus en profondeur dans le lit granulaire. Ces simulations ont également permis de visualiser le fait que la croissance de ces agglomérats colmatant les pores se produit à partir des zones d'étranglement de ces derniers. Dans ce cas, les premières particules déposées à ces endroits et servant de base à la croissance de agglomérats supportent par la suite l'ensemble des contraintes mécaniques exercées par l'écoulement du fluide.

Plus proches des préoccupations de notre étude, Elmøe et al. (2009) ont utilisé la simulation numérique afin d'étudier le colmatage d'un capillaire droit par des nanoparticules représentant les pores de filtres de très grande porosité (Filtre à fibres, film céramique poreux, membrane…). Les dimensions du problème ont à nouveau permis aux auteurs de limiter le temps de calcul puisque les simulations sont menées sur un unique capillaire de faible diamètre (inférieur à 8 µm) et de faible profondeur (10 µm) négligeant ainsi d'éventuelles interconnexions latérales existant au sein du milieu poreux réel. Grâce à ces simulations, les auteurs ont pu observer un colmatage en trois phases, similaires à celles décrites dans le chapitre 2. Ainsi, les nanoparticules se déposent dans un premier temps dans la profondeur, sur les parois du capillaire. Lors de la deuxième phase, le capillaire se colmate peu à peu sous l'effet d'un dépôt se faisant à la fois à l'intérieur et à l'extérieur sous la forme d'un cône. Enfin, une fois le capillaire totalement obstrué on assiste à la formation de gâteau de particules à l'extérieur du capillaire et donc à une augmentation linéaire de la perte de charge avec la masse collectée. Bien qu'intéressantes et qualitativement proches du colmatage de lits granulaires par des PUF, il convient néanmoins de remarquer que ces simulations ne prennent pas en compte le débouchage potentiel des pores sous l'effet de la pression. Par conséquent, la troisième phase pourrait en réalité ne pas être rigoureusement identique à celle simulée par Elmøe et al.

Que ce soit concernant l'état initial ou bien le colmatage, les différentes simulations présentées jusqu'à maintenant consistent à simuler un écoulement puis la trajectoire individuelle de chaque particule. Dans le cas du colmatage ces deux étapes doivent être répétées fréquemment afin de tenir compte de la modification par le dépôt de la structure filtrante et donc de son impact sur l'écoulement. Pour ce faire, la géométrie (i.e., le domaine de simulation) doit être discrétisée à l'endroit du dépôt en éléments (ou mailles) de dimensions inférieures au diamètre des particules. Cette démarche nécessitant un temps de calcul et des ressources informatiques importants, une simplification du problème a souvent été envisagée en étudiant des phénomènes spatialement et/ou temporellement limités (réduction des dimensions des pores, augmentation de la taille des particules, simulation sur un pore modèle…).

Dans le cas de la simulation de colmatages entiers de lits granulaires par des PUF, ce type de simplifications n'est pas possible pour décrire de façon réaliste le problème. En effet, du fait de profils de dépôt de PUF fortement inhomogènes (Bémer et al. 2013), la totalité de la profondeur du lit granulaire doit être simulée. Cette profondeur étant de l'ordre du centimètre, la finesse du maillage requise afin d'obtenir une précision acceptable peut conduire à un nombre de mailles et donc à un temps de calcul importants. De plus, le colmatage du volume poreux du type de lit granulaire utilisé dans cette étude par des particules de tailles nanométriques conduit au calcul de la trajectoire d'un très grand nombre de particules. L'ordre de grandeur du nombre de particules à simuler dans des conditions représentatives des expériences de colmatages par des fumées de métallisation décrites au chapitre 2 est d'environ $1{,}8 \times 10^{14}$ (Débit : 15 l/min, Durée : 1h).

Pour pallier ces difficultés techniques et réduire le temps de calcul, un code commercial, GeoDict® (GEOmetric design and property preDICTion), peut potentiellement être utilisé. Il s'agit d'un code de calcul complet dédié à l'étude des milieux poreux développé depuis le début des années 2000 à l'institut Fraunhofer de mathématiques appliquées à la technologie et à l'économie de Kaiserslautern (ITWM). Depuis 2011, la société Math2Market GmbH s'occupe de la commercialisation et du développement du code de calcul. Ce code se compose de modules indépendants permettant la création des géométries virtuelles de milieux poreux (filtres à fibres, grilles, empilement de sphères…), leur modification a posteriori (compression, répétition, soustraction…), leur analyse (tortuosité, porosité, distribution de taille des pores, conductivité thermique et électrique, propriétés mécaniques…), ainsi que la simulation d'écoulements et de filtrations au travers de ces milieux poreux virtuels. Ces simulations de filtration sont réalisées grâce au module FilterDict® qui permet notamment de simuler des colmatages par des particules de taille très inférieure à celle des volumes élémentaires (Voxels ou pixels volumétriques) définis pour la discrétisation du lit granulaire tout en tenant compte de la modification de la structure interne du milieu poreux en fonction du dépôt. Ceci est réalisé en considérant que chacun des voxels du volume poreux, initialement « vide », devient à son tour un milieu poreux dès lors qu'une particule s'y dépose. Les caractéristiques de ces éléments poreux, i.e., porosité et perméabilité, changent ainsi avec la quantité de particules déposées. Ce module a notamment été utilisé avec succès par Cheng et al. (2012) pour la simulation de colmatage de filtres en céramique à particules de diesel présentant une phase de filtration en profondeur similaire à celle des lits granulaires. Au-delà de cette phase de colmatage en profondeur, ces simulations présentent également une similitude en termes de taille de particules, i.e., 80 nm. Malgré les résultats prometteurs obtenus par Cheng et al. (2012), il convient de noter que les dimensions du domaine simulé sont à nouveau relativement faibles (profondeur = 0,4 mm) en comparaison des lits granulaires dont le colmatage doit être simulé (profondeur = 10 mm). Par conséquent, il est possible que le temps de calcul demeure important malgré des résultats de simulations qui pourraient potentiellement être en bon accord avec les expériences.

Afin de s'en assurer, il a été décidé de tester l'applicabilité et la validité du code de calcul GeoDict® pour la simulation de colmatages de lits granulaires par des PUF. Pour ce faire, on s'attachera à l'étude et à la détermination des paramètres clés des différentes étapes d'une simulation (Tableau III-1). On s'intéressera tout d'abord dans ce chapitre à l'étude des paramètres de génération de la géométrie, à savoir un lit granulaire virtuel (Module PackGeo®). Dans un second temps, on se penchera sur le choix des équations à résoudre pour le calcul de l'écoulement et de la trajectoire des particules compte tenu des conditions expérimentales à simuler (Module FilterDict®). Une fois ces différents choix argumentés, la simulation des performances de lits granulaires vis-à-vis de PUF sera étudiée à l'état initial (lit granulaire vierge) puis en cours de colmatage. Cette dernière partie

consistera notamment en une étude de l'impact des différents paramètres de génération et de simulation sur les résultats d'efficacité et de perte de charge.

Tableau III-1 Descriptifs des différentes étapes d'une simulation de filtration avec GeoDict®

	Principaux paramètres	Actions à réaliser	Modules utilisés dans GeoDict®
I	Porosité (ε_{LG}) Taille des voxels (Vx) Diamètre des collecteurs (d_c) Nombre de collecteurs Dimensions selon les axes X et Y Profondeur – axe Z (z_{LG}) (Mode Pack)	Création de la géométrie : Empilement aléatoire virtuel « lâche » (Pile) ou « compact » (Pack)	PackGeo®: Mode « Pile » Mode « Pack »
II	Epaisseur des zones d'entrée/sortie Taux de compression selon l'axe Z (γ)	Modifications de la géométrie : Ajout de zones vides en entrée/sortie Compression	ProcessGeo®
III-a	Vitesse d'écoulement Distribution granulométrique des particules (diamètres et concentrations)	Simulation des performances initiales: Efficacité initiale Perte de charge initiale	FilterDict®: Mode « Filter Efficiency »
III-b	Fraction volumique solide maximale d'un voxel (f_{max}) Résistivité maximale d'un voxel (σ_{max})	Simulation du colmatage: Evolution de l'efficacité Evolution de la perte de charge	FilterDict®: Mode « Filter Life-Time »

III.2 Simulation de la filtration par lits granulaires avec GeoDict®

III.2.1 Création des milieux poreux virtuels

III.2.1.1 Discrétisation du domaine de calcul

Lors de l'étape de création des milieux poreux avec GeoDict®, le domaine de calcul prend toujours la forme d'un parallélépipède rectangle dont le volume est découpé en volumes élémentaires, appelés voxels (pixels volumiques). Ces voxels peuvent être définis comme vides (Fluide) ou pleins (Solide). L'une des particularités de GeoDict® est que ce découpage (i.e., le maillage de la géométrie) se fait simultanément à sa création. La forme cubique des voxels permet d'avoir un maillage de grande qualité mais n'autorise cependant pas son raffinement dans les zones complexes comme au voisinage des points de contact entre collecteurs. La taille des voxels étant identique dans tout le domaine, il est donc très important de trouver un compromis permettant d'obtenir une bonne précision et un temps de calcul limité malgré les fortes variations d'échelles qui peuvent exister au sein d'une même structure. Dans le cas des lits granulaires, ces variations peuvent être très importantes, la profondeur étant de l'ordre de quelques centimètres contre une centaine de micromètres pour le diamètre des pores. Si la finesse de la discrétisation n'est pas un problème pour la simulation de l'état initial où l'écoulement et les trajectoires des particules ne sont simulés qu'une seule fois, il n'en est pas de même pour la simulation du colmatage où ces calculs sont répétés plusieurs dizaines ou centaines de fois.

III.2.1.2 Génération des lits granulaires

La construction des lits granulaires se fait via le module PackGeo® permettant de générer des empilements de sphères suivant deux modes : *Pack* et *Pile* qui seront détaillés par la suite. Dans cette étude, les lits granulaires consistent en des empilements compacts de sphères (en anglais RCP pour *Random Close Packing*). Les RCP représentent les empilements aléatoires de sphères mono-dispersées ayant la porosité la plus faible possible (37%) après tassage (par exemple par vibrations) (Dullien 2012).

- **Mode *Pack***

En choisissant ce mode de génération, un nombre fixe de sphères sont tassées dans un volume prédéfini jusqu'à atteindre une valeur cible de porosité fixée par l'utilisateur. Pour pouvoir comparer les résultats de simulation et expérimentaux, il faut générer un lit granulaire possédant les mêmes propriétés macroscopiques que dans la réalité (diamètre des collecteurs, profondeur et porosité). La première étape consiste à définir la taille du lit granulaire virtuel et plus précisément sa section perpendiculaire à l'écoulement qui est fortement réduite par rapport à la réalité pour diminuer le nombre de voxels et donc le temps de simulation. En effet, seule la profondeur influe théoriquement sur la perte de charge et l'efficacité de collecte. Cependant, il est nécessaire de conserver une taille de section suffisante par souci de représentativité du milieu poreux virtuel et pour s'affranchir de l'impact d'hétérogénéités locales dans l'empilement. Connaissant le volume total du domaine, la porosité du lit granulaire et le diamètre des sphères, il est possible de calculer le nombre de sphères devant être empilées. Le type de lit granulaire obtenu est présenté ci-après.

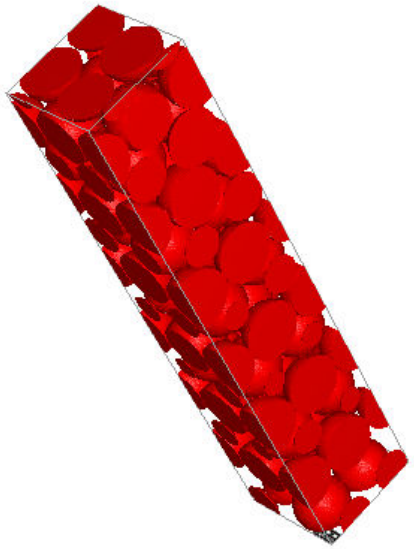


Figure III-2 Lit granulaire généré par le mode Pack (diamètre des sphères: 1mm, Profondeur: 1 cm, Porosité: 0,37)

Si le mode Pack présente l'avantage de générer des lits granulaires de porosité contrôlée par l'utilisateur en une seule étape, il a en revanche l'inconvénient d'autoriser la présence de fractions de sphère en entrée et en sortie de lit granulaire pour atteindre la porosité cible (Figure III-2). Ceci pose un problème de réalisme majeur en comparaison des lits expérimentaux. En effet, l'écoulement et donc la trajectoire des particules calculés en entrée de telles structures seraient totalement erronés. On observe également ce phénomène sur les faces latérales du domaine, mais ceci ne représente pas le même problème du fait de la condition de symétrie qui leur est appliquée.

- **Mode *Pile***

Ce mode de génération simule des empilements créés par chute libre d'un certain nombre de sphères dans un volume dont les dimensions de la section perpendiculaire à l'écoulement doivent être spécifiées en nombre de voxels. Cette méthode permet de se rapprocher d'un cas réel puisque les sphères sont représentées dans leur totalité en entrée et en sortie de lit granulaire (Figure III-3).

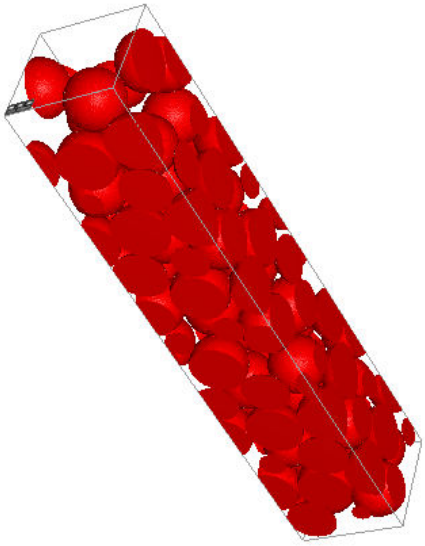


Figure III-3 Exemple de lit granulaire généré par le mode Pile (diamètre des sphères: 1 mm, Profondeur 1 cm)

Cependant, un lit granulaire formé par chute de billes ne constitue pas un empilement compact mais lâche (en anglais RLP pour *Random Loose Packing*). La porosité de ce type d'empilements est d'après la littérature de 0,4 (Dullien 2012). Pour obtenir un RCP à partir de la structure générée par le mode pile, il faut lui appliquer une compression en utilisant la fonction « compress » du module ProcessGeo® qui permet d'effectuer des opérations a posteriori sur les structures. Cette fonction compacte la structure dans une direction (Axe Z). Le taux de compression à spécifier pour obtenir la porosité d'un RCP se calcule de la façon suivante :

$$\gamma = 1 - \frac{1-\epsilon_0}{1-\epsilon_c} \qquad 20$$

Ou ε_0 et ε_c sont les porosités de la structure après génération et à atteindre après compression, respectivement. La compression ne se faisant que dans une seule direction, cet outil est principalement destiné à des structures de haute porosité (supérieure à 90%) si l'on souhaite appliquer des taux de compression importants. Sur nos structures, seuls de faibles taux de compression devraient donc être utilisés. Dans le cas contraire, des erreurs devraient apparaître ou des lits granulaires déformés devraient être obtenus. Pour vérifier cette hypothèse des tests de génération de RCP via cette méthode ont été réalisés pour différents ratios (ϕ) entre la profondeur et le diamètre des collecteurs. Les données de ces essais sont récapitulées dans le Tableau III-2. Dans ce tableau apparait la notion de random seed commune aux deux modes de génération présentés. Le random seed est un nombre entier positif qui détermine une combinaison aléatoire de positions initiales pour chacune des sphères composant les empilements. Ainsi, en choisissant deux random seeds différents, on obtient deux empilements présentant les mêmes propriétés macroscopiques mais pas rigoureusement identiques. Par souci de représentativité des résultats, les taux de compression obtenus lors de ces tests de génération correspondent, pour chacune des configurations présentées ci-dessus, à la moyenne des valeurs obtenues pour 8 random seeds.

Tableau III-2 Paramètres des essais de génération de RCP via la méthode « Pile and Compress »

Diamètre des sphères (mm)	Largeur de lit granulaire (mm)	Profondeur théorique de lit granulaire (mm)	Profondeur/Diamètre de collecteur	Valeur cible de porosité	Random seeds
1	7	5	5	0,37	1/5/10/266/333/665/514/269
1	5	5	5		
1	4	5	5		
1	3	5	5		
0,5	2	3,5	7		
1	2	5	5		
1	2	6	6		
1	2	7	7		
1	2	10	10		
1	2	15	15		
1	2	20	20		
1	2	100	100		

Les résultats de ces essais sont regroupés sur la figure ci-après représentant le taux de compression requis pour obtenir un RCP en fonction du ratio profondeur de lit granulaire/diamètre de collecteur, ϕ

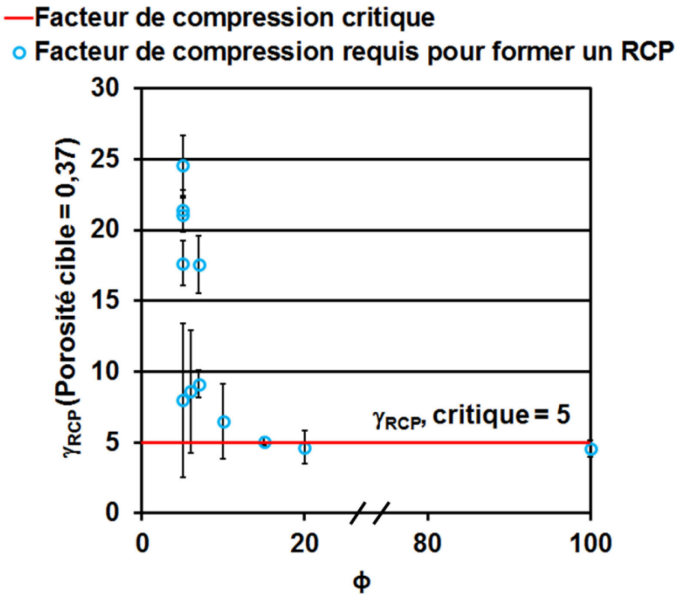


Figure III-4 Taux de compression requis pour la formation de RCP en fonction du ratio profondeur/diamètre des collecteurs

D'après la Figure III-4, il apparait que le taux de compression nécessaire à l'obtention de RCP tend vers une valeur constante de 5% obtenue à partir de ϕ ≈ 15. La corrélation de ces résultats avec les constatations visuelles effectuées sur les lits granulaires obtenus semble indiquer que ces deux valeurs seuils doivent être respectées autant que possible pour générer des empilements compacts de bonne qualité (Figure III-5).

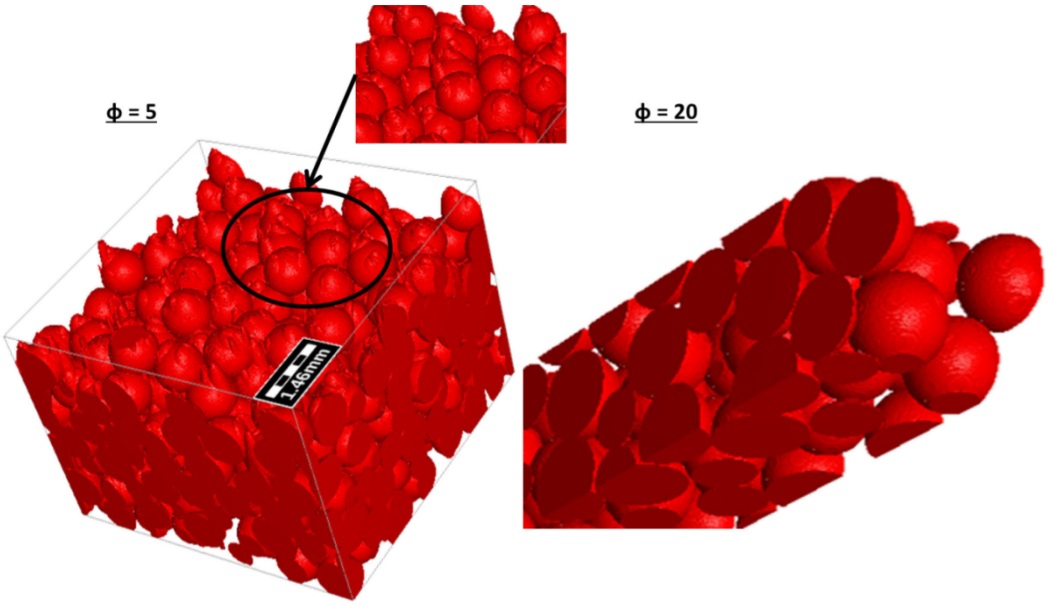


Figure III-5 Exemple de RCP générés par compression de RLP pour des valeurs de ϕ de 1,25 et 10

On remarque cependant au vu de la variabilité liée aux différents random seeds, qu'il est parfois possible d'avoir une valeur de γ_{RCP} inférieure à 5% pour des valeurs de ϕ inférieures à 15. D'après l'équation 1, il est également intéressant de constater qu'une valeur de γ_{RCP} de 5% correspond à une porosité de RLP à compresser de 0,4015 parfaitement en accord avec la valeur théorique de la littérature. Ceci tend à prouver que pour ϕ > 15, il est possible d'obtenir des empilements lâches aléatoires conformes à la réalité tout en s'affranchissant de l'effet du random seed de génération.

Une fois les empilements compacts de sphères générés à l'aide de l'un des deux modes présentés ci-dessus, une dernière étape consiste à ajouter une zone vide en amont et en aval de la structure. Ces zones sont nécessaires à la simulation de l'écoulement et de la filtration au sein des lits granulaires. Elles doivent être suffisamment grandes pour que l'écoulement et les trajectoires des particules soient établis et stables avant d'entrée dans le milieu poreux. La contrainte minimum concernant la zone amont est une taille supérieure au diamètre maximum des particules à filtrer. Pour s'assurer que ces zones soit assez grandes, leur épaisseur a été fixée à plusieurs centaines de voxels. L'ordre de grandeur de la taille de voxels est le micromètre, le choix de leurs dimensions est discuté dans une autre partie de ce chapitre. Si l'épaisseur de cette zone peut être arbitrairement fixée, il est tout de même conseillé de la définir de sorte que le nombre de voxels dans la direction de la profondeur soit décomposable en produit de 2^n avec n prenant les valeurs les plus faibles possibles. Le respect de cette règle de dimensionnement du domaine permet de réduire le temps de calcul d'après les développeurs du code.

III.2.2 Calcul des écoulements

III.2.2.1 Choix des équations

Les simulations de filtration se font en deux étapes réalisées dans le module FilterDict®. La première étape est le calcul de l'écoulement permettant dans un second temps de calculer la trajectoire des particules à partir du bilan des forces s'exerçant sur elles. L'écoulement peut être calculé en résolvant les équations de Stokes ou de Navier-Stokes selon le régime d'écoulement (laminaire/non-laminaire), i.e., selon la vitesse superficielle du fluide (Figure III-6). La Figure III-6 montre ainsi que tant que la perte de charge évolue linéairement avec la vitesse du fluide au sein du milieu poreux, l'écoulement y est laminaire et peut-être simulé en résolvant uniquement l'équation de Stokes.

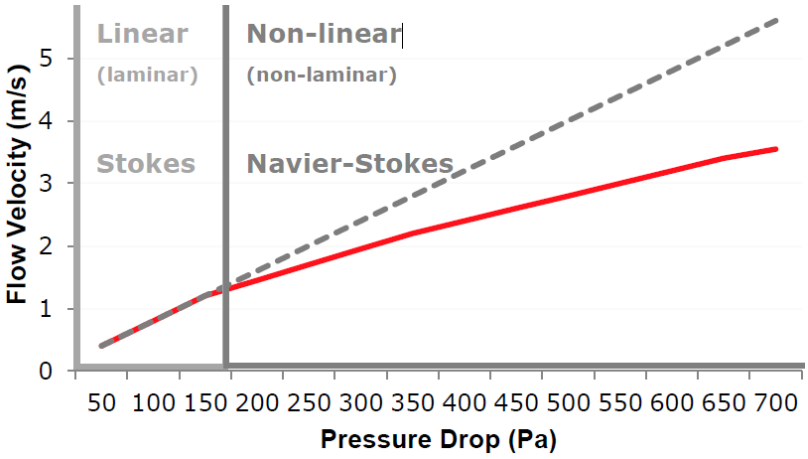


Figure III-6 Allure de la courbe d'évolution de la vitesse d'écoulement en fonction de la perte de charge d'un milieu poreux (D'après le guide utilisateur de GeoDict®)

En milieu granulaire, le régime d'écoulement peut être caractérisé par le nombre de Reynolds basé sur le diamètre des collecteurs qui s'écrit :

$$Re_c = \frac{\rho_{fl} U d_c}{\mu} \qquad 21$$

Avec ρ_{fl} la masse volumique de l'air, U la vitesse superficielle, d_c le diamètre de sphères composant le lit granulaire, µ la viscosité dynamique de l'air. Le régime laminaire s'étend pour ce nombre de Reynolds jusqu'à des valeurs égales à 10 et le régime turbulent commence à partir de 2000. Dans le cadre de nos simulations les vitesses (20 cm/s) et les diamètres de collecteurs (1 mm) les plus élevés correspondent à une valeur maximale de ce nombre de Reynolds environ égale à 13, soit une valeur très proche de la transition entre le régime laminaire et le régime intermédiaire. De ce fait, les simulations devraient pouvoir être réalisées en résolvant uniquement l'équation de Stokes, ce qui représenterait un gain de temps. Cette hypothèse a pu être vérifiée grâce à des expériences réalisées dans un travail précédent à l'INRS (Drescher 2013). En effet, les résultats de ces expériences présentés sur la Figure III-7 montrent une évolution linéaire de la perte de charge au travers d'un lit granulaire de 10 cm et composé de collecteurs de 1mm de diamètre en fonction de la vitesse superficielle jusqu'à environ 20 cm/s.

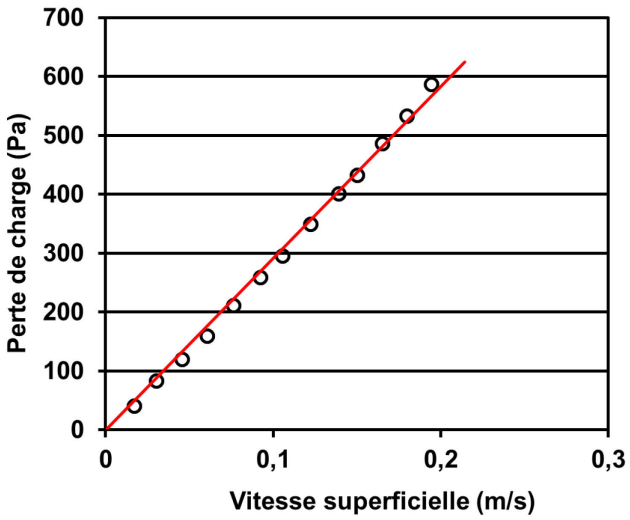


Figure III-7 Evolution expérimentale de la perte de charge en fonction de la vitesse superficielle (Profondeur = 10 cm, Diamètre des collecteurs = 1mm) (d'après Drescher, 2013)

III.2.2.2 Choix du solveur

Le choix des équations à résoudre étant réalisé, il a ensuite fallu sélectionner le solveur permettant de réduire le temps de calcul au maximum tout en conservant une précision acceptable. Il existe trois différents solveurs dans GeoDict® pouvant être utilisés dans notre cas. Le premier, appelé EJ (Explicit Jump), est en théorie rapide et requiert peu de mémoire mais n'est applicable que pour des simulations d'écoulements laminaires. Le deuxième type de solveur, appelé Simple-FFT (Semi-Implicit Method for Pressure Linked Equations-Fast Fourier Transform), requiert en principe un plus grand temps de calcul et plus de mémoire mais il peut en revanche être appliqué en régime laminaire comme non-laminaire. Enfin, le troisième solveur, appelé LIR (Left Identity Right), permet de réduire drastiquement la mémoire nécessaire. Ce solveur est d'après les développeurs aussi rapide que le solveur EJ pour des écoulements dans des structures faiblement poreuses (i.e., telles que les RCP) mais permet en revanche un gain de temps très important lors de simulations impliquant des structures hautement poreuse (i.e., telles que les médias fibreux). Les améliorations en termes d'utilisation de mémoire et de temps de calcul apporté par le solveur LIR sont dues à l'utilisation d'un maillage adaptatif pour la résolution de l'écoulement. En effet, la principale caractéristique de ce solveur est d'augmenter les dimensions des voxels dans les zones à faible gradient de vitesse (baisse de la résolution) tout en gardant la résolution originale (dimensions des voxels définies lors de la génération de la structure) dans des zones où la vitesse est susceptible de variée fortement, i.e., au voisinage des surfaces solides. Pour une description complète de ce solveur le lecteur peut se référer à Linden et al. (2015).

La comparaison entre ces trois types de solveurs est donnée dans le tableau suivant pour un même lit granulaire en termes de perte de charge, de temps de calcul et d'utilisation des ressources. La profondeur du lit granulaire simulé est de 1 cm, le diamètre des collecteurs de 1 mm et la vitesse superficielle de 20 cm/s. La station de calcul utilisée pour ces simulations présente les caractéristiques suivantes : 16 processeurs Intel® Xeon® E5520 cadencés à 2,27 GHz, 192 Go de RAM.

Tableau III-3 Temps d'accès aux résultats à paramètres de simulation identiques pour les différents solveurs

Solveur	Temps de calcul (min)	Perte de charge obtenue (Pa)	RAM utilisée (Gb)
FFT Stokes	48,78	52,43	5,03
EJ Stokes	183,76	52,39	3,91
LIR Stokes	5,78	50,01	N.C.[2]

D'après ces résultats, il apparait que le solveur LIR, réduisant en théorie considérablement le temps de calcul pour des structures hautement poreuses, permet également d'accélérer les simulations sur nos lits granulaires de faibles porosités tout en fournissant des pertes de charge du même ordre de grandeur que celles obtenues avec les autres solveurs. Si un faible temps de calcul de l'écoulement est important mais non-obligatoire pour la simulation de l'état initial, il apparait en revanche crucial de le minimiser dès lors que l'on envisage de simuler le colmatage entier de lits granulaires nécessitant le calcul à de nombreuses reprises de l'écoulement. D'après ces résultats, le solveur LIR a ainsi été choisi pour le reste de cette étude.

III.2.3 Simulation de l'état initial

Outre le choix du solveur et des équations à résoudre, il est important de connaitre l'impact de la variation de certains paramètres sur la précision des résultats d'efficacité et de perte de charge initiale. Cette étude de sensibilité à l'état initial est par ailleurs indispensable pour la simulation du colmatage afin que d'éventuelles erreurs ne soient pas répercutées à chaque recalcul de l'écoulement.

III.2.3.1 Etude de sensibilité

III.2.3.1.1 Influence de la taille des voxels

Le raffinement de la discrétisation des lits granulaires générés influe directement sur la qualité des résultats. Il faut par conséquent trouver un compromis lors du choix de la taille des voxels afin d'obtenir des résultats fiables tout en limitant au maximum le temps de calcul et l'utilisation des ressources. Pour déterminer cette taille de voxels critique, des essais ont été réalisés sur une même structure ne différant d'une simulation à l'autre que par la dimension des voxels (5 à 100 µm). A propriétés macroscopiques constantes (i.e., nombre de collecteurs, section, porosité, diamètre des collecteurs), la génération d'empilements aléatoires toujours rigoureusement identiques est possible en conservant le même random seed. Ces simulations ont été effectuées sur des lits granulaires de 1 cm de profondeur constitués de collecteurs de 1 mm de diamètre.
Avant de s'intéresser à l'impact de la discrétisation du domaine sur les simulations de filtration, l'influence de ce paramètre sur la structure en elle-même a été étudiée. En effet, la dimension des voxels ayant un impact direct sur la sphéricité des collecteurs (Figure III-8) et donc sur leur empilement, l'évolution de la profondeur du lit granulaire en fonction de la taille des voxels a été suivie (Figure III-9).

[2] Non-communiqué : La quantité de mémoire vive utilisée pour cette simulation n'était pas disponible dans les fichiers .log de l'essai mené avec le solveur LIR.

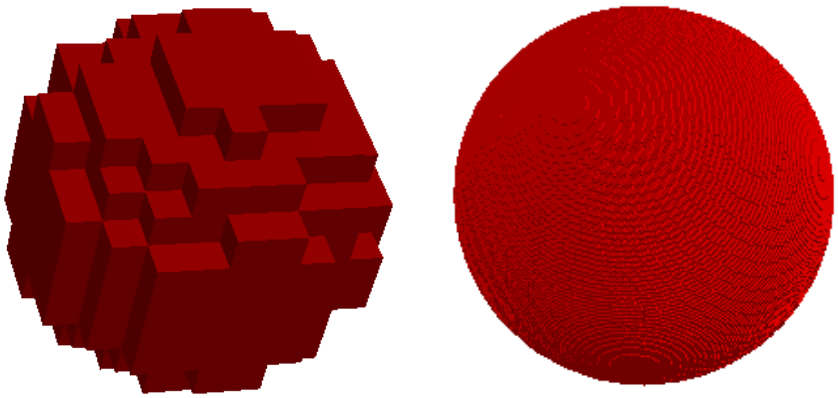


Figure III-8 Collecteurs virtuels générés selon deux tailles de voxels: 100 µm à gauche et 5 µm à droite

D'après la Figure III-9, la variation de profondeur liée aux différents degrés de raffinement du maillage est très faible. Dans le cas le plus défavorable (voxels de 100 µm) l'écart à la profondeur cible théorique n'est que de 1%. Cet écart se réduit tout de même avec la finesse de la discrétisation et atteint une valeur constante de 0,2% pour des voxels de taille inférieure ou égale à 15 µm. Enfin, on remarque que la profondeur théorique n'est jamais parfaitement atteinte. Ceci est lié au fait qu'une profondeur donnée ne correspond quasiment jamais à un nombre entier de sphères, ce qui oblige l'utilisateur à effectuer une approximation.

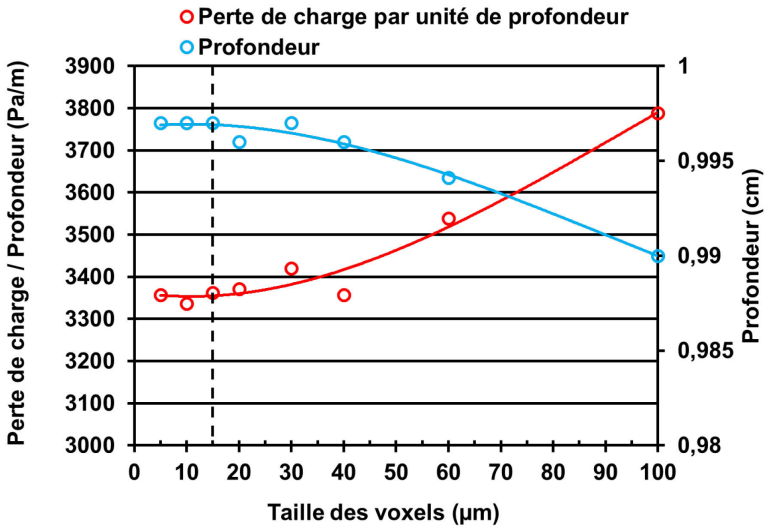


Figure III-9 Evolution de la profondeur et de la perte de charge par unité de profondeur d'un lit granulaire en fonction de la taille des voxels

Par ailleurs, pour différentes tailles de voxels, un écoulement correspondant à une vitesse superficielle de 10 cm/s a été calculé. Pour s'affranchir de la faible variation de profondeur, les pertes de charge représentées sur la Figure III-9 ont été normalisées et exprimés en $Pa.m^{-1}$. L'influence du maillage sur les valeurs de perte de charge obtenue est bien plus significative que sur la profondeur. En effet, la perte de charge diminue de près de 11% entre les simulations réalisées avec des voxels de 100 µm et 5 µm. Cette augmentation de la perte de charge avec la taille des voxels est cohérente avec la diminution de la profondeur observée pour les voxels les plus grands. En effet, le nombre de sphère restant le même, une profondeur plus faible engendre une porosité plus faible et donc une plus grande résistance à l'écoulement. Il est dès lors logique que la perte de charge tende également vers une constante pour une taille de voxels inférieure ou égale à 15 µm.

Il semble par conséquent qu'il ne soit pas nécessaire d'utiliser des voxels de moins de 15 µm pour la simulation de l'écoulement dans les conditions testées (collecteurs de 1 mm de diamètres). Cependant, la sphéricité des collecteurs ne dépendant pas seulement d'une taille absolue de voxel, il est plus pertinent de raisonner par rapport à un ratio entre la taille des collecteurs et celle des voxels. Dans ce cas particulier, ce ratio étant de 66, on peut émettre l'hypothèse qu'il faille respecter une valeur minimale comprise entre 65 et 70 pour que la taille des voxels n'influe plus sur les valeurs de perte de charge.

Le calcul de l'écoulement permet de connaitre la trajectoire des particules et ainsi de calculer une efficacité de collecte à partir du nombre de particules rentrant en contact avec les collecteurs. Il est possible dans notre cas de prendre en compte le mouvement brownien des nanoparticules par l'intermédiaire d'un terme ajouté à l'équation de mouvement permettant de simuler leurs déplacements erratiques autour des lignes de courant. Même si des particules nanométriques sous l'influence majoritaire de la diffusion brownienne ne suivent pas les lignes de courant, il est possible qu'une discrétisation trop grossière conduise à une erreur non-négligeable sur l'efficacité initiale de collecte. En effet, on peut supposer que l'aspect crénelé des collecteurs introduise une surestimation du phénomène d'interception pour des particules se trouvant sur le trajet de lignes de courant, mais également une hausse de la probabilité de collecte des particules browniennes. Ce phénomène est mis en évidence par la Figure III-10 qui représente les lignes de courant d'un écoulement d'air autour d'un collecteur sphérique discrétisé par des voxels de 20 µm. En effet, on remarque que certaines de ces lignes de courant croisent la surface du collecteur et passent au travers de plusieurs voxels (Figure III-10 – Entourés jaunes). Ainsi, des particules dont la trajectoire suit une de ces lignes de courants ou est influencée par elle peuvent être retenues par ce qui s'apparente à un mécanisme « artificiel » de collecte.

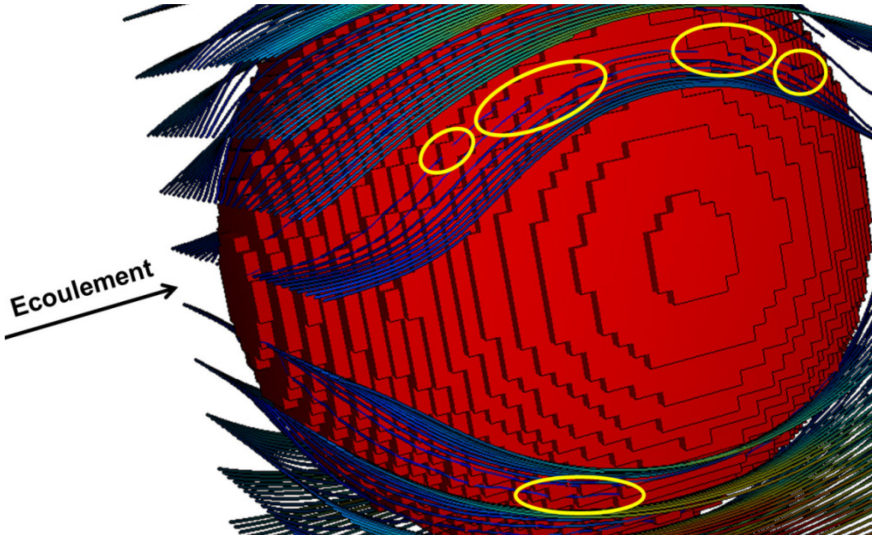


Figure III-10 Lignes de courant d'un écoulement autour d'un collecteur sphérique (Taille de voxels = 20 µm)

Si ce mécanisme de collecte « artificiel » existe alors l'efficacité de collecte d'un traceur, i.e., de particules de masse infinitésimalement faible (masse volumique identique à celle de l'air et diamètre de 10^{-30} m), obtenue sans prendre en compte la diffusion brownienne devrait augmenter avec la taille des voxels. Le fait de ne pas tenir compte de la diffusion brownienne ainsi que la très faible taille et masse des particules permet d'obtenir une efficacité de collecte liée uniquement aux lignes de courant croisant véritablement les collecteurs. Les résultats de ces simulations d'efficacité de collecte vis-à-vis d'un traceur semblent confirmer cette hypothèse et montrent clairement l'apparition d'une efficacité résiduelle augmentant avec la taille des voxels (Figure III-11).

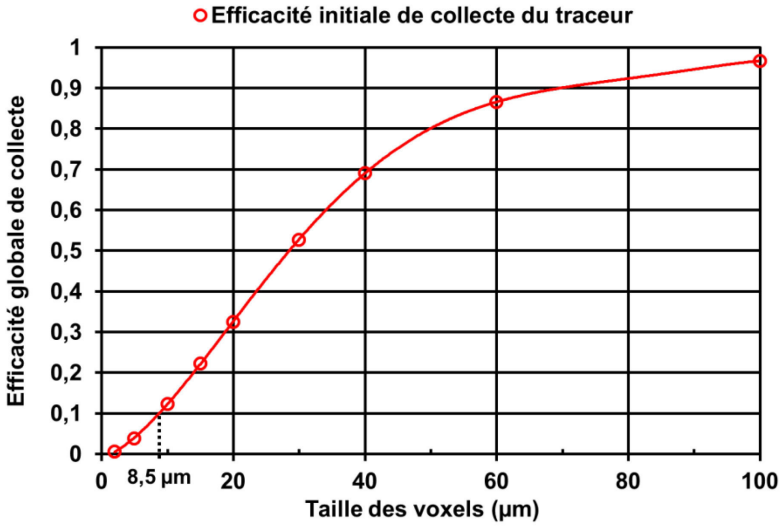


Figure III-11 Efficacité résiduelle de collecte en fonction de la taille des voxels (Z_{LG} = 1 cm, d_c = 1mm)

D'après la Figure III-11, il apparait qu'il faille définir dans ce cas particulier des voxels mesurant 2 µm pour s'affranchir quasi-totalement de l'efficacité résiduelle (0,62%) et au plus 8,5 µm afin d'obtenir des résultats d'efficacité de collecte qui soient entachés d'une faible erreur résiduelle (<10%). Le rapport minimum à respecter dans ce dernier cas entre la taille des collecteurs et celle des voxels serait ainsi égal à environ 117 soit presque le double en comparaison du ratio nécessaire à l'obtention d'une perte de charge indépendante de la taille des voxels. Cela représente par conséquent une augmentation sensible du temps de calcul. L'erreur résiduelle sur l'efficacité de collecte liée au maillage pouvant être quantifiée d'après les résultats précédents, il devrait être possible de l'utiliser pour corriger les efficacités initiales calculées avec des discrétisations plus grossières. Cela pourrait ainsi potentiellement réduire les temps de calcul. Afin d'effectuer cette correction, l'efficacité résiduelle a été attribuée à un mécanisme de collecte artificiel indépendant des autres mécanismes classiques. La première étape est de calculer l'efficacité unitaire de collecte résiduelle (η_{dis}) à partir de celle simulée sur l'ensemble du lit granulaire.
Pour ce faire, on utilise la relation liant l'efficacité d'un lit granulaire à celle d'un de ses collecteurs (Tien 2012) :

$$E_{LG} = 1 - \exp\left(-\frac{3}{2} * \frac{(1-\epsilon_{LG})z_{LG}}{d_c} * \eta_T\right) \leftrightarrow \eta_T = -\frac{2}{3} * \ln(1 - E_{LG}) * \frac{d_c}{(1-\epsilon_{LG}) * z_{LG}} \qquad 22$$

Avec E_{LG} l'efficacité totale du lit granulaire, z_{LG} la profondeur du lit granulaire et η l'efficacité unitaire de collecte.
Dans un deuxième temps, cette même formule est appliquée aux résultats de simulations d'efficacité initiale tenant compte de la diffusion brownienne et de la véritable taille des particules. On obtient ainsi l'efficacité unitaire totale (η_T) vis-à-vis de l'aérosol considéré qui regroupe les effets de tous les mécanismes de collecte y compris celui lié à discrétisation. Cette efficacité unitaire totale peut être exprimée en fonction des contributions de chacun des mécanismes grâce à la formule suivante (Tien 2012) :

$$\eta_T = 1 - \prod(1 - \eta_i) \qquad 23$$

Où l'indice i désigne les différents mécanismes de collecte. Les seuls mécanismes ayant un impact significatif dans la collecte des nanoparticules étant la diffusion brownienne et dans une moindre de mesure l'interception, il a été décidé de négliger l'impaction inertielle et la sédimentation dans l'équation 23.

Cette formule s'écrit donc en tenant compte de l'efficacité résiduelle :

$$\eta_T = 1 - (1 - \eta_{Br})(1 - \eta_R)(1 - \eta_{dis}) \qquad 24$$

Avec les indices Br désignant la diffusion brownienne, R l'interception et dis l'efficacité résiduelle liée à la taille des voxels (i.e., la discrétisation). Connaissant η_T et η_{dis}, il est possible d'obtenir l'efficacité unitaire totale corrigée ($\eta_{T,corr}$) en combinant l'équation 24 avec l'expression suivante :

$$\eta_{T,corr} = 1 - (1 - \eta_{Br})(1 - \eta_R) \qquad 25$$

$\eta_{T,corr}$ s'écrit alors :

$$\eta_{T,corr} = 1 - \frac{1 - \eta_T}{1 - \eta_{dis}} \qquad 26$$

En réinjectant $\eta_{T,corr}$ dans l'équation 22, l'efficacité totale corrigée du lit granulaire peut alors être obtenue. Afin de vérifier que cette démarche de correction est valide et d'en trouver les limites d'application, des simulations d'efficacité initiale ont été réalisées pour différentes tailles de voxels (5 à 100 µm). Les lits granulaires utilisés pour ces simulations sont identiques à ceux ayant permis d'obtenir les résultats des Figure III-9 et Figure III-11. Pour déterminer la taille de voxels à partir de laquelle la correction permet d'atteindre des résultats satisfaisants et donc en dessous de laquelle il n'est plus nécessaire de raffiner le maillage, les données de simulation ont été comparées aux prédictions de modèles de la littérature (Tardos, Gutfinger, et Abuaf 1976; Gutfinger et Tardos 1979). Pour obtenir, l'efficacité globale du lit granulaire grâce aux modèles d'efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne et interception, l'efficacité unitaire de collecte totale est tout d'abord calculée pour chaque taille de particule grâce à l'équation 23 qui prend alors la forme suivante :

$$\eta_T = 1 - (1 - \eta_{Br})(1 - \eta_R) = 1 - \left(1 - 3{,}988\frac{1{,}31}{\epsilon_{LG}}\mathrm{Pe}^{-\frac{2}{3}}\right)\left(1 - 1{,}5\frac{1{,}31}{\epsilon_{LG}}\mathrm{R}^2\right) \qquad 27$$

Une fois calculées pour chaque taille de particules, les efficacités unitaires totales de collecte sont injectées dans l'équation 22 pour obtenir les efficacités globales de collecte d'un lit granulaire donné vis-à-vis des différentes classes granulométriques.

Les résultats de ces comparaisons entre les simulations et les modèles de la littérature sont présentés sur la Figure III-12. Cette dernière montre que les courbes des données corrigées pour des dimensions de voxels inférieures à 10 µm se superposent et que pour ces mêmes dimensions l'accord avec le modèle servant de référence est excellent. Des voxels de 10 µm suffiraient donc dans ce cas à atteindre une bonne précision, soit pour des voxels 100 fois moins grands que le diamètre des collecteurs. La Figure III-12 permet par ailleurs d'observer que cette correction n'est pas valide pour toutes les tailles de voxels et que l'efficacité résiduelle pourrait ne pas devoir être considérée, notamment au travers de l'équation 24, comme la cause d'un mécanisme de collecte artificielle.

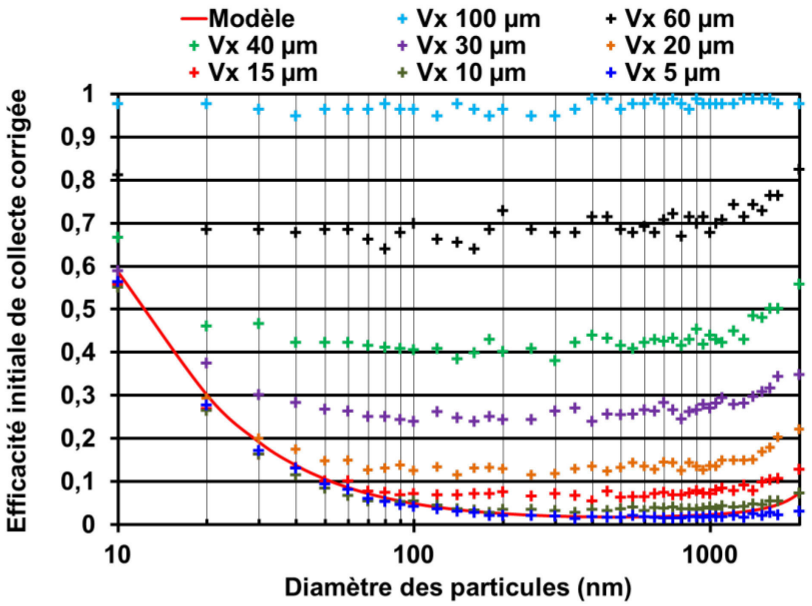


Figure III-12 Efficacité fractionnelle pour différentes tailles de voxels comprises entre 5 et 100µm (Z_{LG} = 1 cm, d_c = 1mm)

Afin de vérifier cela, il a été décidé de comparer les efficacités prédites par les modèles théoriques précédemment décrits avec celles obtenues en appliquant une correction consistant en une simple soustraction de l'efficacité unitaire résiduelle. L'efficacité unitaire corrigée est exprimée dans ce cas par :

$$\eta_{T,corr} = \eta_T - \eta_{dis} \qquad 28$$

Cette comparaison a permis de montrer que le seuil d'applicabilité de la correction est, dans les deux cas, identique (Vx=10 µm). Ceci tend ainsi à prouver qu'il n'est pas erroné en-dessous de cette limite de considérer que l'efficacité résiduelle est la cause d'un mécanisme de collecte artificiel à part entière. La limite d'applicabilité peut par ailleurs s'expliquer par le fait que les modèles servant de point de comparaison dans ces essais ont été développés à partir d'un modèle d'écoulement autour de collecteurs parfaitement sphériques. En effet, au-delà d'une certaine taille de voxels, la sphéricité des collecteurs pourrait devenir trop différente de celle d'une véritable sphère du fait du crénelage important de leur surface. Cette hypothèse est par ailleurs cohérente avec le fait que la dimension des voxels requise pour que les données corrigées soient en accord avec le modèle de référence varie en fonction de la taille des particules. En effet, il est possible d'observer que, pour des particules de diamètre inférieur à 40 nm quasi-uniquement collectées par diffusion brownienne, des voxels mesurant 20 µm suffisent à obtenir les bonnes valeurs d'efficacité initiale et, qu'à l'inverse, il est nécessaire de davantage raffiner le maillage dès que le phénomène d'interception n'est plus négligeable. Ceci pourrait être dû au fait que lorsque le diamètre des particules augmente, ces dernières ont tendance à suivre davantage les lignes de courant et donc à être de plus en plus collectées du fait des collisions entre ces dernières et la surface crénelée des collecteurs (Figure III-8). Les particules n'étant pas purement collectées par diffusion brownienne seraient ainsi significativement impactées par la non-sphéricité des collecteurs pour des dimensions de voxels plus faibles en comparaison des particules purement browniennes dont les trajectoires sont moins influencées par les lignes de courant.

Il a également pu être observé que l'efficacité unitaire résiduelle calculée avec l'équation 22 à partir de l'efficacité résiduelle globale simulée de lits granulaires de différentes profondeurs (efficacité de collecte simulée d'un traceur sans prise en compte de la diffusion brownienne) reste quasi-constante (Figure III-13).

Le fait que l'efficacité unitaire résiduelle obtenue par l'équation 22 soit indépendante des variations de profondeur tend également à confirmer les hypothèses faites précédemment en montrant que ce phénomène de collecte résiduelle est induit localement à l'échelle des collecteurs par un mécanisme artificiel d'intensité identique au travers du lit granulaire et lié à leur aspect crénelée.

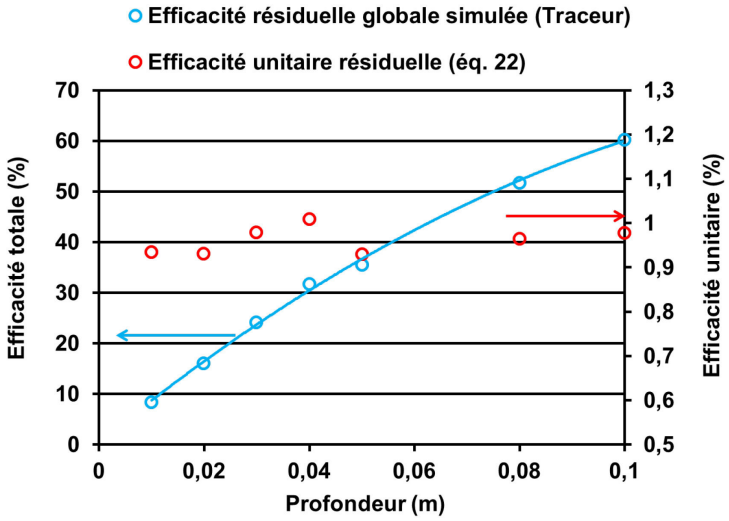


Figure III-13 Efficacités résiduelles simulées et efficacités résiduelles unitaires calculées avec l'équation 3 pour des lits de différentes profondeurs (Taille des voxels = 10 µm)

Enfin, pour s'assurer du gain de temps qu'apporterait la correction des données simulées par l'efficacité résiduelle de collecte, les temps de calcul avec et sans simulation de cette dernière ont été comparés. Il a ainsi pu être observé que la fraction du temps de calcul que représente l'efficacité résiduelle est négligeable par rapport à celle de l'écoulement et de l'efficacité totale de collecte. Il a également pu être remarqué que pour une erreur résiduelle réduite à 3,84% pour des voxels de 5 µm, le temps de calcul sans simulation de l'efficacité résiduelle est 3,5 fois plus important que celui incluant son calcul pour des voxels de 10 µm. Ainsi, il apparait que pour la simulation de l'état initial l'utilisation de cette correction permet un gain de temps significatif.

III.2.3.1.2 Influence des « random seeds »

Comme mentionné précédemment, le choix de différents random seeds lors de la création de la géométrie permet d'obtenir des lits granulaires aux empilements semblables (même propriétés macroscopiques) mais pas rigoureusement identiques. Sachant cela, il a été décidé dans cette partie d'étudier l'influence des random seeds sur les résultats de simulation. Pour ce faire, des simulations d'écoulement ont tout d'abord été réalisées en utilisant des lits granulaires similaires mais générés selon trois random seeds différents (Figure III-14). Les simulations pour ces trois random seeds ont également été réalisées pour quatre dimensions de voxels différentes afin d'observer si des variations dans la finesse du maillage sont susceptibles d'avoir une influence sur la dispersion des résultats de simulations.

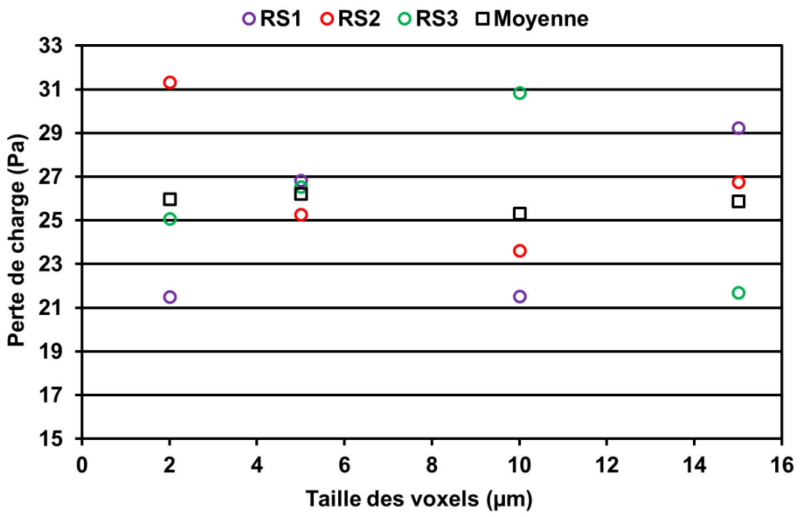


Figure III-14 Perte de charge simulée en fonction de la taille des voxels pour 3 random seed différents (Z_{LG} = 1 cm, d_c = 1mm)

Pour une même configuration, i.e., une même taille de voxel sur la Figure III-14, on observe une dispersion relativement forte des valeurs de perte de charge entre random seeds. En effet, pour ces quatre configurations le coefficient de variation (rapport entre l'écart-type d'une série de données et sa valeur moyenne) varie de 2% à 15,7%. Il est également intéressant de remarquer que cette dispersion des valeurs n'est pas corrélée et ne diminue pas avec la diminution de la taille des voxels. En effet, le coefficient de variation des valeurs de perte de charge obtenue pour des voxels de 2 µm (15,64%) est très supérieur à celui correspondant à une taille de voxel de 5 µm (2,59%). La dispersion des valeurs observée dans ces simulations peut s'expliquer par les dimensions des lits granulaires utilisés avec un ratio entre leur profondeur et le diamètre des collecteurs, ϕ, d'environ 10. En effet, il a pu être observé précédemment qu'une faible valeur de ϕ (inférieure à 15) pouvait poser des problèmes de représentativités des empilements générés, notamment en termes de porosité. Ainsi, dans les configurations utilisées pour ces simulations, il pourrait ne pas être possible de s'affranchir d'hétérogénéités locales dans l'empilement. Ces hétérogénéités peuvent consister en des zones de forte ou de faible porosité provoquant des pertes de charge anormalement faibles ou anormalement élevées, respectivement. Dans ces situations, il peut par conséquent être nécessaire d'effectuer une moyenne des résultats de simulation obtenus pour plusieurs random seeds pour obtenir une valeur de perte de charge proche de la réalité.

Comme rappelé ci-dessus, des structures aléatoires réalistes en termes de porosité peuvent être obtenues indépendamment des random seeds lors de la génération des géométries si la valeur de ϕ dépasse 15. Sur cette base, l'hypothèse peut alors être faite que la dispersion des valeurs de perte de charge entre random seeds devrait être fortement atténuée à partir de cette même valeur de ϕ. Ceci a pu être vérifié par le calcul des écarts moyens de perte de charge entre random seeds pour différentes configurations (profondeurs de 1 à 10 cm, diamètres de collecteur de 0,5 mm et 1 mm et vitesses superficielles de 5, 10 et 20 cm/s, ϕ compris entre 10 et 100). Ces résultats sont représentés sur la Figure III-15 qui montre que l'écart de perte de charge entre random seeds oscille faiblement autour de 2% pour ϕ > 15.

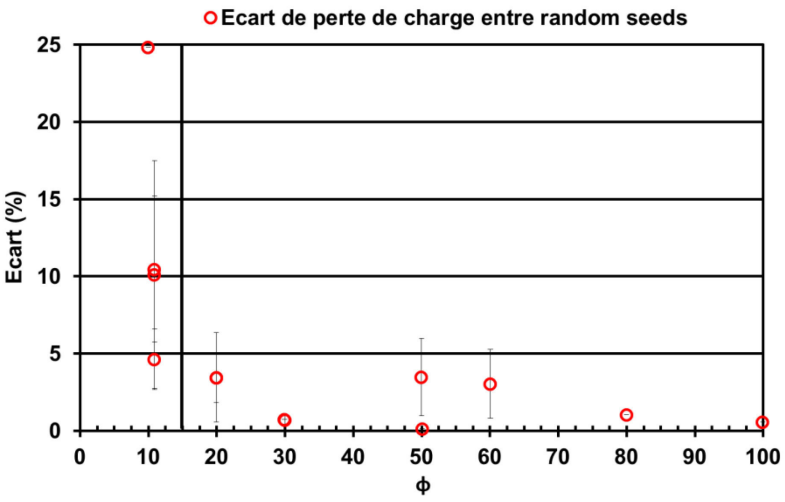


Figure III-15 Ecarts moyens de perte de charge entre des lits granulaires générés à partir de différents random seed en fonction du ratio ϕ

Les écarts d'efficacité fractionnelle initiale (sans prise en compte de l'efficacité résiduelle) entre deux random seeds sont quant à eux représentés sur la Figure III-16 pour deux valeurs différentes de ϕ (10 et 100) tout en conservant un même diamètre de collecteur (1 mm) et une même vitesse superficielle (10 cm/s). Cette figure met à nouveau en évidence une forte baisse de la dispersion des résultats entre random seeds avec l'augmentation de ϕ. En effet, pour une valeur de 100, les différences d'efficacité fractionnelle entre les deux random seeds sont réduites pour chaque classe granulométrique à moins de 6%. Cette comparaison montre également que pour les très faibles diamètres de particules (inférieurs à 40 nm), l'écart entre les deux random seeds est presque deux fois moins important que pour les autres classes granulométriques. Ce phénomène pourrait être expliqué par le fait que la collecte des très petites particules ne se fasse qu'exclusivement par diffusion brownienne. En effet, ces particules ne suivant pas les lignes de courant pourraient être moins impactées par les différences d'écoulement entre random seeds que celles de diamètres plus importants. Cette baisse d'écart peut également provenir du fait que l'efficacité de collecte de ces particules est significativement plus importante que celles des autres particules plus grossières.

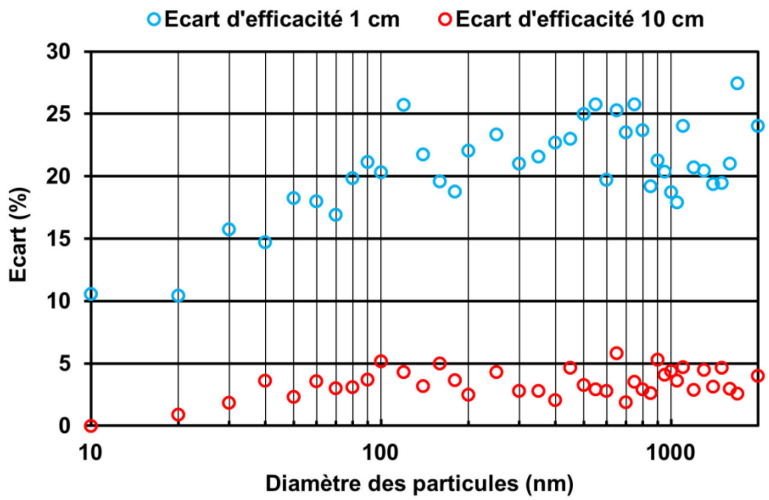


Figure III-16 Ecarts d'efficacités fractionnelles (sans correction) entre 2 lits granulaires générés à partir de 2 random seeds différents (20 et 100) pour 2 profondeurs (1 cm et 10 cm)

III.2.3.1.3 Récapitulatif

Dans cette section, certaines règles qu'il convient à priori de respecter afin de pouvoir déterminer les paramètres régissant la génération des lits granulaires ont été énoncées. Ces paramètres sont notamment la taille des voxels, le rapport ϕ (profondeur du lit granulaire/diamètre des collecteurs), le taux de compression,γ, nécessaire à la formation d'empilements aléatoires compacts (RCP) ou encore les random seeds. Il est ainsi apparu qu'il faille respecter une valeur d'environ 15 pour ϕ et d'environ 5 pour γ afin d'obtenir des RCP présentant une bonne représentativité (i.e., ne présentant pas d'hétérogénéités locales dans l'empilement des collecteurs). Par ailleurs, un rapport minimal d'environ 120 entre le diamètre des collecteurs et la taille des voxels devrait être respecté pour que cette dernière n'influence pas ou peu les valeurs de perte de charge et d'efficacité de collecte initiales simulées. Dans le cas de simulations des performances initiales de lits granulaires, une correction basée sur la simulation de l'efficacité résiduelle d'un traceur a été développée et permet d'abaisser ce ratio à une valeur d'environ 100 et ainsi de réduire le temps de calcul. Des essais de simulation ont par ailleurs montré que le respect des valeurs préconisées pour les paramètres ϕ et γ permet de réduire drastiquement la dispersion des valeurs de perte de charge et d'efficacité entre des lits granulaires macroscopiquement similaires mais générés selon différents random seeds.

III.2.3.2 Validation du code de calcul vis-à-vis des performances initiales

Une fois l'étude de sensibilité réalisée, des simulations ont pu être menées afin de valider le code de calcul par comparaison avec les performances initiales de lits granulaires vis-à-vis de particules ultrafines. Les simulations ont tout d'abord été confrontées à des résultats d'expériences de filtration réalisées à l'INRS sur un banc d'essai dédié aux mesures des performances initiales (Drescher 2013). Grâce au banc d'essai utilisé, la distribution granulométrique en entrée et en sortie de lits granulaires et l'état de charge des particules sont parfaitement connus. De plus l'emploi d'un générateur de nanoparticules (PALAS AGK 2000) par nébulisation d'une solution saline de chlorure de sodium permet d'obtenir des particules cubiques non-agglomérées se rapprochant du cas idéal de particules sphériques (plage granulométrique allant de 10 nm à 1000 nm). Ce dernier point est essentiel pour la comparaison avec les données de simulations puisque cela permet de s'affranchir de l'utilisation dans GeoDict® de diamètres équivalents pas toujours représentatifs de la vraie morphologie des particules. Les paramètres opératoires de ces expériences sont récapitulés dans le tableau ci-dessous :

Tableau III-4 Paramètres des expériences de performances initiales des lits granulaires vis-à-vis d'aérosols ultrafins

Paramètres	Exp. 1	Exp.2
ϕ	100	100
Profondeur (cm)	10	10
Diamètre des collecteurs (mm)	1	1
Porosité (%)	36,8	36,8
Vitesse superficielle (cm/s)	11,16	5,58
Etat de charge des particules	Neutre	Neutre
Masse volumique des particules (kg/m^3)	2160	2160

Les structures utilisées pour ces simulations ont été générées en respectant les conditions définies lors de l'étude sensibilité notamment vis-à-vis de la taille des voxels (8,2 µm).

Ces premières expériences représentent des cas idéaux de par la forme cubique et non poreuse des particules utilisées qui diffèrent fortement en termes de morphologie de celles composant les fumées de métallisation. Ces dernières représentant les particules d'intérêt de notre étude, les résultats fournis par GeoDict® ont été dans un deuxième temps confrontés à des données issues d'expériences réalisées sur le banc de métallisation présenté dans le chapitre 2. Les principaux paramètres des expériences ayant servi à effectuer cette seconde étape de validation sont récapitulées dans le tableau ci-dessous :

Tableau III-5 Paramètres des expériences utilisées pour la validation de GeoDict® à l'état initial vis-à-vis de particules nanostructurées non-sphériques

Vitesse superficielle (cm/s)	Diamètre des collecteurs (mm)	Profondeur (cm)	ϕ
19,9	0,5	1,09	22
19,9	0,8	1,09	13,75
19,9	1	1,09	10

Enfin, il convient de noter que par souci de précision, les simulations ont été réalisées en utilisant trois random seeds différents pour chacune de ces configurations expérimentales.

III.2.3.2.1 Efficacité initiale de collecte

- Filtration de particules de chlorure de sodium (Na-Cl)

Les résultats expérimentaux d'efficacité de collecte des deux expériences réalisées avec des particules de Na-Cl à deux vitesses superficielles différentes sont représentés sur la Figure III-17. Sur ces graphiques figurent également les résultats de simulation obtenus avec GeoDict® ainsi que les prédictions des modèles d'efficacité initiale utilisés précédemment comme référence dans l'étude de sensibilité (Figure III-12). D'après ces différents résultats, il apparait que, dans tous les cas, l'efficacité initiale de collecte est une fonction décroissante du diamètre des particules sur la gamme de diamètres considérés, i.e., de 10 nm à 1000 nm. Ce comportement correspond à la baisse d'intensité du mécanisme de collecte par diffusion brownienne non-compensée par l'augmentation significative d'autres mécanismes tels que l'interception ou l'impaction inertielle. On constate également que l'efficacité de collecte devient plus faible avec l'augmentation de la vitesse d'écoulement. Ce comportement est également en accord avec la théorie puisque l'efficacité de collecte par diffusion brownienne est une fonction décroissante du nombre de Péclet qui augmente avec la vitesse d'écoulement.

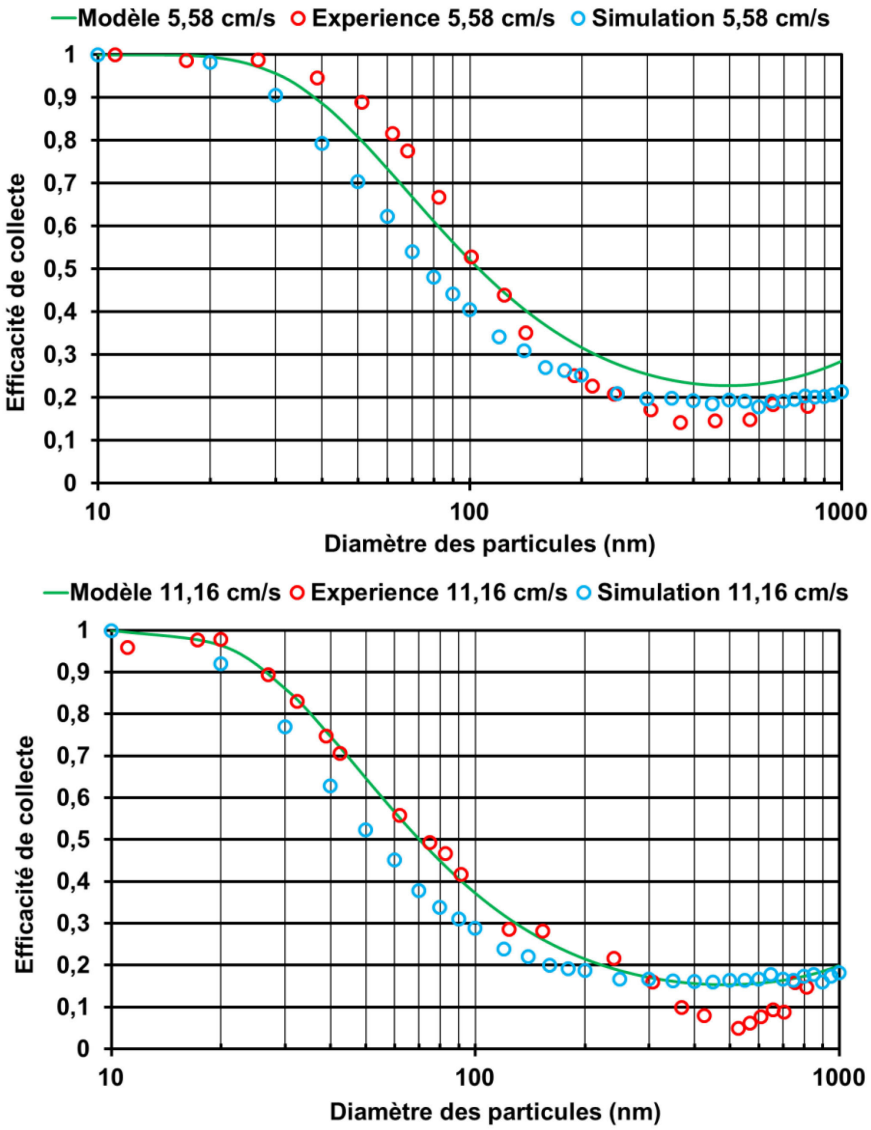


Figure III-17 Comparaison des données de simulation d'efficacités fractionnelles initiales avec les résultats des expériences n°1 et n°2

Ces comparaisons montrent par ailleurs un bon accord entre les expériences, les modèles et les résultats de simulation bien que ces derniers soient systématiquement inférieurs à ceux expérimentaux pour les particules ultrafines (inférieures à 100 nm). L'écart peut atteindre 30 % pour ce type de particules pour les deux vitesses d'écoulement considérées. Cet écart maximal est rencontré pour des particules de diamètre proche de 60 à 70 nm. On remarque également qu'au-delà de 100 nm et plus spécifiquement à partir d'environ 200 à 300 nm, les simulations et les modèles ont tendance à légèrement surestimer les résultats expérimentaux. Cette gamme de diamètres de particules correspond à celle des particules les moins collectées (MPPS pour Most Penetrating Particles Size défini au chapitre 1), i.e., pour lesquelles l'interception est le principal mécanisme de collecte du fait de la baisse importante de l'intensité du phénomène de diffusion brownienne. On remarque également que l'écart entre les expériences et la simulation grandit au niveau du MPPS lorsque la vitesse d'écoulement augmente. On peut ainsi émettre l'hypothèse, qu'au-delà d'une certaine taille de particules, la simulation et les modèles surestiment l'effet de la diffusion brownienne dans la collecte des particules.

- Filtration des fumées de métallisation (Zn-Al)

Le code de calcul ayant été validé pour la simulation de l'efficacité initiale de collecte de particules quasi-idéales de Na-Cl, les simulations ont ensuite été confrontées aux résultats obtenus lors d'expériences de filtration des fumées de métallisation. La principale différence concerne la génération des particules car l'unité industrielle de métallisation produit des PUF de Zn-Al prenant la forme d'agglomérats qui doivent être assimilés à des sphères dans GeoDict® en utilisant un diamètre équivalent. Le choix a été fait de représenter les particules par leur diamètre équivalent en volume car il est celui qui se rapproche le plus de la réalité dans la mesure où le dépôt simulé contiendrait le même volume de matière que le dépôt réel. Cet argument qui pourrait être discuté vis-à-vis de l'état initial, semble en revanche pertinent concernant les simulations de colmatages qui doivent conserver du début jusqu'à la fin des réglages uniques en matière de distribution granulométrique. Les résultats de ses comparaisons en termes d'efficacité globale de collecte des lits granulaires (Tableau III-6) ainsi qu'en termes d'efficacités fractionnelles (Figure III-18) montrent à nouveau un bon accord comparable à celui observé vis-à-vis des particules de Na-Cl (Figure III-17).

Tableau III-6 Comparaisons des efficacités initiales simulées et expérimentales vis-à-vis des nanoparticules de Zn-Al

Efficacité totale expérimentale (%)	Efficacité totale moyenne simulée (%)	Ecart (%)
29,85	25	13,79
15,96	15,2	4,76
12,59	10,8	14,2

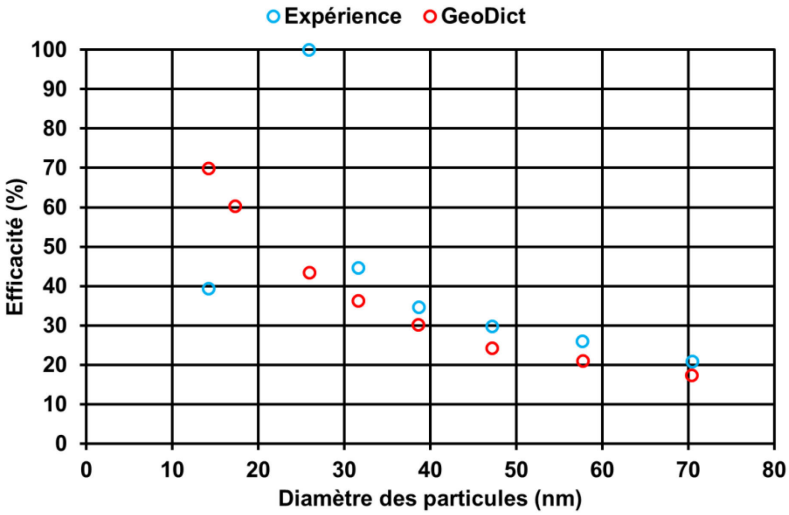


Figure III-18 Comparaison des données de simulation d'efficacités fractionnelles initiales avec des résultats expérimentaux de filtration de fumées de métallisation (diamètre des collecteurs = 0,5 mm)

On constate néanmoins que deux points expérimentaux sur la Figure III-18 sont très éloignés des résultats de simulation. Ces différences sont liées à des erreurs expérimentales provoquées par le fait que les deux classes granulométriques concernées sont naturellement très peu représentées dans les fumées de métallisation. Ce phénomène est par ailleurs accentué par la dilution par un facteur 100 en amont du Nanoscan servant à mesurer les concentrations en entrée et sortie de lit granulaire. Ainsi, le nombre de particules comptées par le Nanoscan correspondant à ces deux classes granulométriques est de l'ordre de quelques centaines en amont du lit granulaire, nuisant ainsi à la précision des résultats d'efficacité initiale correspondant. A titre de comparaison, les nombres

particules comptées pour les autres classes granulométriques après dilution sont compris entre 40 000 et 112000.

III.2.3.2.2 Perte de charge initiale

Concernant la perte de charge, l'accord est sensiblement moins bon comme le montre le Tableau III-7 qui regroupe les valeurs de pertes de charge expérimentales, simulées et modélisées par la loi de Kozeny-Carman dans les conditions décrites précédemment (expériences avec particules de Na-Cl et de Zn-Al). Ces données montrent une sous-estimation de la perte de charge lors des simulations. Cet écart ne dépendant pas du nombre de Reynolds (25% pour Re_c = 12,9 et 33% pour Re_c = 3,6), il ne semble donc pas lié au choix de résoudre l'équation de Stokes.

Tableau III-7 Comparaison des résultats expérimentaux de perte de charge avec les données de simulation

Vitesse superficielle (cm/s)	Re_c	ΔP (Pa) RS1/RS2/RS3/Moyenne	ΔP (Pa) Expérience	ΔP (Pa) Kozeny-Carman	Ecart (%) Exp./Sim.
5,58	3,6	106/107/108/107	162	141	33
11,16	7,2	212/216/216/215	324	283	33
19,89	6,4	177/184/190/184	231	222	20
19,89	10,3	70/63/74/70	97	87	27
19,89	12,9	57/48/49/55	74	55	25

Afin de vérifier si le choix du solveur n'est pas en cause, les profils de perte de charge simulés au moyen des différents solveurs de l'équation de Stokes ont été comparés (Figure III-19). Grâce à la Figure III-19, il est possible de remarquer que des différences existent entre les profils obtenus par différents solveurs. Ainsi, on constate que les résultats obtenus par le solveur LIR utilisé lors de nos essais diffèrent sensiblement de ceux fournis par les solveurs EJ et SIMPLE-FFT, ces derniers étant par ailleurs quasi-identiques. En effet, il apparait que le profil simulé à l'aide du solveur LIR est inférieur à ceux des deux autres solveurs et donc que l'utilisation des solveurs EJ et SIMPLE-FFT réduirait la sous-estimation de la perte de charge simulée en comparaison des résultats expérimentaux (Tableau III-7). Néanmoins, cette différence entre solveurs étant seulement comprise entre 10 et 15%, cela ne permet pas d'expliquer l'erreur observée dans le Tableau III-7, i.e., comprise entre 20 et 30%.

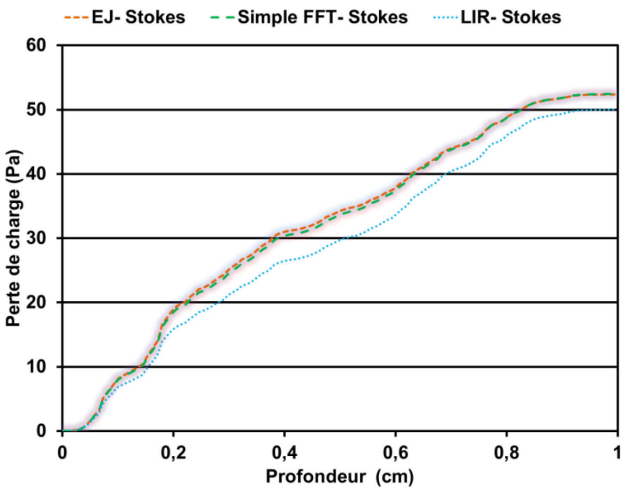


Figure III-19 Profils de perte de charge obtenus par les différents solveurs de l'équation de Stokes (Profondeur de lit granulaire : 1 cm, Vitesse superficielle : 19,89 cm/s)

Malgré les écarts significatifs qui peuvent exister en termes de perte de charge entre les expériences et les résultats de simulations, il est important de noter que ces derniers reproduisent tout de même fidèlement l'allure de la diminution de la perte de charge avec l'augmentation du diamètre des collecteurs. Ceci est mis en évidence par la Figure III-20 qui représente les pertes de charge expérimentales, simulées et modélisées par la loi de Kozeny-Carman dans les conditions des expériences de filtration des fumées de métallisation.

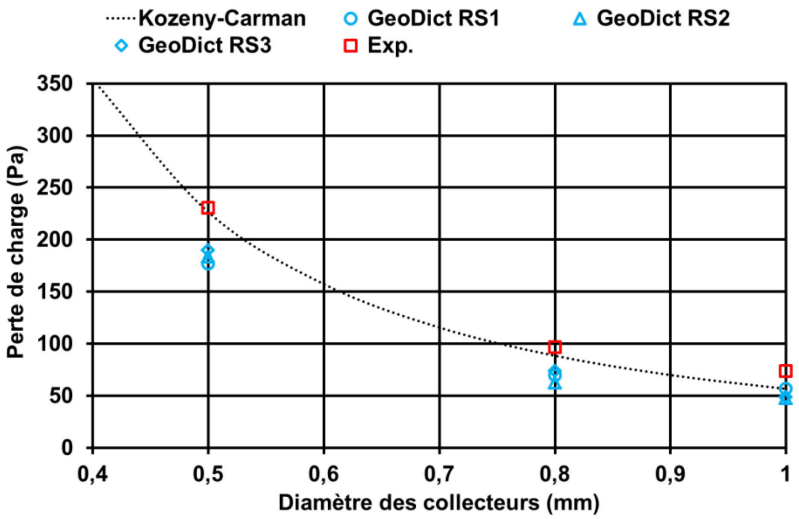


Figure III-20 Comparaisons des valeurs de pertes de charge simulées et expérimentales

Enfin, il est intéressant de remarquer que les résultats expérimentaux sont proches de la loi de Kozeny-Carman. En effet, l'écart avec cette dernière est inférieur à 12% dans la plupart des cas. Cet écart pourrait correspondre à de légères différences de conditions opératoires notamment de profondeur ou dans l'empilement des collecteurs. Ce faible écart permet ainsi de confirmer que la loi de Kozeny-Carman peut être considérée comme un modèle de référence représentant de façon relativement précise la réalité.

D'après l'étude de sensibilité réalisée, il a été possible d'observer que la dispersion des résultats entre random seed dépend fortement du ratio ϕ pour une même configuration expérimentale. Sur le même principe, l'écart entre les pertes de charge simulées et la loi de référence de Kozeny-Carman a été calculé et représenté en fonction de ϕ sur la Figure III-21. Il a ainsi été observé que cet écart tend vers une constante d'environ 22% pour une valeur de ϕ supérieure à 20 (cf. Figure III-15). Cette valeur de ϕ étant proche de la limite décrite précédemment, cela semble confirmer la validité des structures générées au-delà de ce seuil. Le fait que l'écart à une loi de référence atteigne une valeur quasi-constante permettrait également dans ces conditions de connaitre l'erreur initiale commise au départ d'une simulation de colmatage.

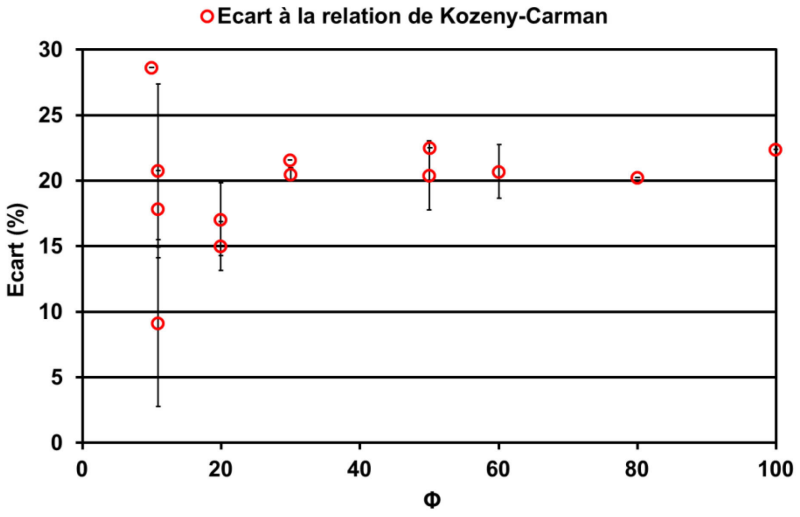


Figure III-21 Ecarts relatifs entre les simulations et les prédictions de la loi de Kozeny-Carman en fonction de ϕ

III.2.4 Simulation du colmatage

Le code de calcul ayant été validé pour la simulation des performances initiales de lits granulaires vis-à-vis d'aérosols de nanoparticules, des simulations de colmatage ont pu être entreprises grâce au mode « Filter Life Time » (nommé FLT dans le reste de ce chapitre) du module FilterDict®.

III.2.4.1 Principe de fonctionnement du mode « Filter Life Time » de FilterDict

Le principe d'une simulation de colmatage par le mode FLT de FilterDict® est le suivant : au premier pas de temps, l'écoulement au travers du lit granulaire vierge est calculé grâce au solveur et aux équations choisis précédemment dans ce chapitre (solveur LIR - équation de Stokes). Une fois l'écoulement initial calculé, un certain nombre de particules est injecté. Ce nombre est déterminé à partir de la définition du pas de temps (durée (dt) d'injection des particules avant que l'écoulement ne soit recalculé), de la concentration totale massique, de la distribution granulométrique de l'aérosol, de la masse volumique des particules et du débit volumique. Les trajectoires des particules injectées pendant dt sont alors calculées permettant de connaitre l'emplacement des collisions entre les particules et les collecteurs. Pour connaitre la localisation des particules déposées, il est nécessaire de choisir un modèle d'adhésion lors des réglages des paramètres de simulation afin de prendre en compte d'éventuels rebonds des particules. Dans le cas de nanoparticules, l'hypothèse a été faite qu'elles sont collectées à leur premier contact avec la surface des collecteurs. Cette hypothèse a été jugée valable par comparaison des nombres de Stokes de nanoparticules avec ceux rencontrés dans la littérature faisant état d'un phénomène de rebond. Kasper et al. (2010) ont observé dans une étude sur la morphologie des dépôts de particules sur une fibre cylindrique que les rebonds n'apparaissaient qu'en cas de forte inertie des particules caractérisée par des nombres de Stokes (équation 29) supérieurs à 1,5. Le nombre de Stokes ne dépassant pas dans cette étude 7×10^{-5} (diamètre des collecteurs = 0,5 mm, diamètres des particules = 100 nm, et vitesse superficielle de 20 cm/s), aucun phénomène de rebond ne devrait se produire lors de la filtration de nanoparticules.

$$St = \frac{\rho_p U d_p^2}{18 \mu d_c} \qquad 29$$

Par ailleurs, les particules utilisées mesurant plus de 4 nm de diamètre, aucun phénomène de rebond thermique supplémentaire n'est à prendre en compte (Mouret 2008).

Sur le même principe, un modèle d'adhésion au premier contact a été choisi pour simuler les collisions entre les particules déjà déposées et celles non-collectées. Une fois que la localisation du dépôt est connue, l'écoulement du pas de temps suivant est calculé en tenant compte des particules déposées. Cette procédure, réitérée jusqu'à ce qu'un critère d'arrêt prédéfini soit atteint (un temps de colmatage, une perte de charge maximum ou un nombre maximum d'itérations), permet de connaitre l'évolution de la masse collectée, de l'efficacité de filtration et de la perte de charge.
Notre cas présente cependant une singularité. Du fait des dimensions des domaines de calcul (de l'ordre du centimètre), il n'est pas possible pour des questions de temps de simulation et de capacité de stockage de définir des voxels de taille inférieure à celle des particules. On parle ainsi de particules non-résolues. L'écoulement et les trajectoires des particules hors de l'état initial ne peuvent par conséquent pas tenir compte des changements instantanés d'état de surface des collecteurs. Pour s'affranchir de ce problème, Geodict® propose une méthode basée sur la variation de perméabilité des voxels en fonction de la masse de particules y étant déposée.

Le principe de cette méthode est le suivant: au premier pas de temps de la simulation, une certaine quantité de particules est collectée dans le lit granulaire. Les voxels comprenant ces particules sont alors considérés comme des milieux poreux dont la résistivité va augmenter au fur et à mesure que des particules s'y déposent. La résistivité utilisée dans GeoDict® correspond au rapport entre la viscosité du fluide et la perméabilité instantanée d'un voxel. Lorsque la fraction volumique de particules déposées dans un voxel atteint une valeur maximale, la résistivité de ce voxel prend une valeur seuil. Cette fraction volumique (f_{max}) et cette résistivité (σ_{max}) maximales sont à définir par l'utilisateur. Pendant le régime intermédiaire où la fraction volumique solide d'un voxel est inférieure à f_{max}, sa résistivité est calculée par :

$$\sigma = \frac{f}{f_{max}} * \sigma_{max} \qquad 30$$

Où f et σ sont respectivement les valeurs locales instantanées de la fraction volumique de particules à l'intérieur du voxel et de sa résistivité.

III.2.4.2 Etude de sensibilité

De façon analogue aux essais de simulation de l'état initial, une étude de sensibilité a été entreprise afin de déterminer l'influence de la variation des principaux paramètres régissant les simulations de colmatage. Malheureusement, une erreur liée au code de calcul (codage d'un variable induisant un nombre négatif de particules dans certaines classes granulométriques) et résolue tardivement lors de lors de ce travail n'a pas permis d'approfondir au maximum cette étude de sensibilité. Malgré la présence de cette erreur, un certain nombre de simulation ont pu tout de même être exploitées. En effet, dans la mesure où ces dernières sont quantitativement impactées de façon identique par ce problème de codage (même nombres négatifs de particules pour les mêmes classes granulométriques), l'évolution des résultats relative aux variations des paramètres de simulation a pu être qualitativement étudiée dans les cas où les données d'injections sont restées inchangées (concentration, durée d'injection et débit identique). Ces simulations ont été réalisées pour des conditions opératoires identiques aux expériences 2 (a, b, c) présentées dans le chapitre précédent (Diamètre de collecteurs = 1 mm, Particules de Zn-Al, Profondeur = 11 mm et vitesse superficielle = 19,89 cm/s). Enfin, il convient de préciser que les évolutions de perte de charge sont représentées dans la suite de ce chapitre en fonction de la masse surfacique collectée (rapport entre la masse collectée et la section du lit granulaire).

A profondeur égale de lit granulaire, l'utilisation de la masse surfacique permet de comparer, en termes de masse collectée, l'état de colmatage simulé et expérimental en s'affranchissant de la différence de section entre le domaine de calcul et le lit granulaire réel.

III.2.4.2.1 Influence de la fraction volumique solide maximale d'un voxel f_{max}

Pour rappel, la fraction volumique solide maximale d'un voxel correspond au volume maximal de particules que peut contenir un voxel. Cette grandeur détermine directement la masse de particules devant être collectée dans un voxel pour qu'il ne puisse plus accueillir de particules et donc que le dépôt se fasse dans un des voxels vierges adjacents (i.e., situés au-dessus d'un voxel ayant atteint f_{max}). Ce paramètre est d'une grande importance car il dicte pour une masse de dépôt donnée le degré d'obstruction des pores. Lors de l'étude de la simulation de l'état initial, il a été montré que le choix du diamètre équivalent en volume pour représenter les particules nanostructurées permettait d'obtenir des résultats de simulation fidèles à la réalité. L'utilisation de ce même diamètre équivalent lors des simulations de colmatage prend un sens physique capital puisque cela crée des dépôts composés du même volume solide que dans la réalité pour une masse collectée donnée. Cela permet donc de définir ce que doit représenter physiquement la valeur de f_{max}, l'utilisation du diamètre équivalent en volume des particules imposant que f_{max} corresponde à la compacité réelle du dépôt pour que le volume total qu'il occupe soit identique à celui rencontré lors des expériences. La comparaison de simulations de colmatage réalisées en ne faisant varier que la valeur de f_{max} permet de confirmer l'influence de ce paramètre. En effet, plus f_{max} diminue plus la masse de particules nécessaire à la croissance significative de la perte de charge est faible, i.e., plus le nombre de voxels contenant un dépôt est important (Figure III-22).
Néanmoins, pour des compacités classiquement rencontrées dans la littérature concernant les dépôts de nanoparticules, (i.e., n'excédant pas 0,1) la seule variation de f_{max} n'influence pas sensiblement la croissance de la perte de charge.

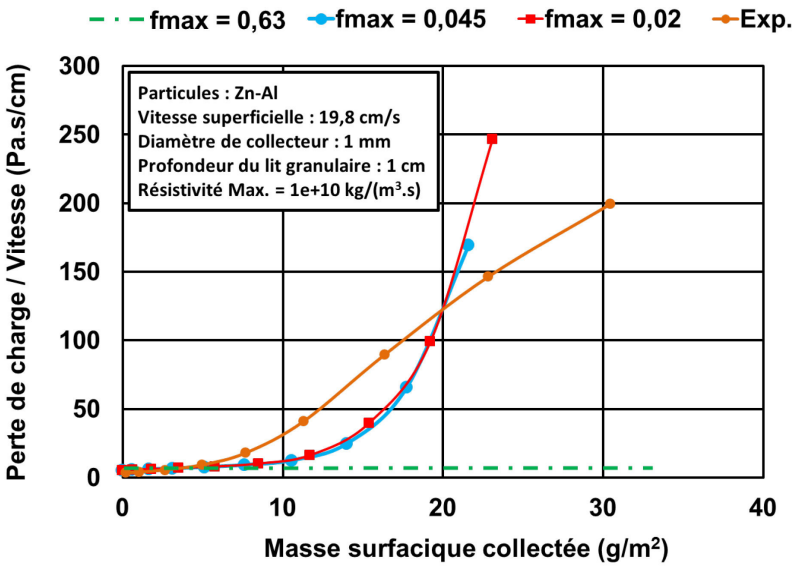


Figure III-22 Perte de charge simulée en fonction de la masse surfacique collectée pour différentes valeurs de f_{max}

Les particules étant représentées par des sphères dans GeoDict®, une simulation a également été réalisée en affectant à f_{max} une valeur de 0,63, soit la compacité théorique d'un empilement aléatoire compact de sphères (RCP). Cela a montré qu'une telle compacité ne permet pas de générer une augmentation significative de la perte de charge.

En effet, dans cette configuration la masse surfacique de particules devant être collectée pour qu'un nombre suffisant de voxels contiennent un dépôt et contribuent à l'obstruction du volume poreux est supérieure à celle calculée à la fin des expériences correspondantes (chapitre 2 : Exp. n°2 a, b, c). Au-delà des écarts d'évolution de perte de charge, considérer le dépôt des particules dans un voxel comme un RCP n'est pas physiquement réaliste. En effet, de par la prépondérance du mouvement brownien pour des nanoparticules et les modèles d'adhésion choisis (au premier contact), des particules, mêmes sphériques, ne pourraient pas se réarranger entre elles pour atteindre des compacités semblables à celles de RCP.
De par ce que doit représenter physiquement f_{max}, il a été possible de définir précisément comment affecter une valeur à ce paramètre et par conséquent d'éviter qu'il ne serve de variable d'ajustement. Si l'on fait l'hypothèse que les dépôts de nanoparticules en surface de collecteurs se construisent de façon identique aux gâteaux en surface d'un filtre, il apparait alors acceptable d'en calculer la compacité par des relations issues de la littérature. L'une d'entre elles (équation 31), développée empiriquement par Thomas et al. (2014), permet de calculer la compacité de gâteaux de particules nanostructurées en fonction du nombre de Péclet (équation 32). L'utilisation du nombre de Péclet permet notamment de tenir compte de l'influence de la vitesse d'écoulement.

$$1 - \alpha_d = \frac{1 + 0{,}498\mathrm{Pe}}{1.019 + 0{,}464\mathrm{Pe}} \qquad 31$$

$$\mathrm{Pe} = \frac{\mathrm{U}d_{me}}{D_{Br}} \qquad 32$$

Avec α_d la compacité du dépôt, Pe le nombre de Péclet, U la vitesse de l'écoulement, d_{me} le diamètre équivalent en mobilité électrique (défini au chapitre 1) et D_{Br} la diffusivité brownienne. On rappelle que le calcul de la diffusivité brownienne est décrit au chapitre 2.
Afin d'utiliser les équations précédentes, un certain nombre de précisions doivent néanmoins être apportées :

- Le dépôt se formant dans les pores, la vitesse de l'écoulement dans l'équation 32 correspond à la vitesse interstitielle, U_i, i.e., le rapport entre la vitesse superficielle et la porosité du lit granulaire : $U_i = \frac{U}{\epsilon_{LG}}$
- L'aérosol étant polydispersé, la corrélation 32 utilise un diamètre médian équivalent en mobilité électrique lors du calcul du nombre de Peclet.

Les incertitudes maximales des résultats ayant servi à obtenir l'équation 31 étant de ±0,007 (Thomas et al. 2014), le calcul de f_{max} peut présenter un biais par rapport à la réalité. Cependant, le faible écart entre les données de simulation présentées sur la Figure III-22 résultant d'une variation de f_{max} permet de s'affranchir de ces incertitudes. Ainsi, dans les conditions opératoires simulées lors cette étude de sensibilité, la valeur de f_{max} à utiliser d'après l'équation 31 serait de 0,0542.

III.2.4.2.2 Influence de la résistivité maximale d'un voxel σ_{max}

Alors que le paramètre f_{max} conditionne le volume occupé par le dépôt, la résistivité maximale d'un voxel détermine, grâce à l'équation 30, la résistivité instantanée (i.e., la résistance à l'écoulement) des voxels en cours de colmatage. D'après cette expression liant σ à σ_{max} par la fraction de f_{max} que représente le volume instantané de dépôt dans un voxel, il apparait que, pour une même valeur de f_{max}, une plus faible valeur de σ_{max} conduit à une augmentation moins forte de σ et donc de la perte de charge pour un incrément de masse collectée identique. Ceci semble par ailleurs être en accord avec le raisonnement suivant.

En effet, si l'on considère à une profondeur donnée le dépôt (voxels poreux) et la section libre des pores (voxels vides) comme des zones parallèles d'écoulement, la répartition du débit total entre ces deux zones est uniquement fonction de leur différence de résistance à l'écoulement. Ainsi pour un même volume de dépôt (à f_{max} constant), plus la résistivité maximale d'un voxel est grande, plus une fraction importante du débit passera à travers la section libre des pores. Par conséquent, σ_{max} influe, à f_{max} constant, sur l'augmentation locale de la vitesse interstitielle en fonction de la masse collectée et donc sur la perte de charge. Afin de connaitre l'influence de la seule variation de σ_{max} sur l'évolution de la perte de charge, des simulations ont été réalisées pour différentes valeurs de ce paramètre (Figure III-23).

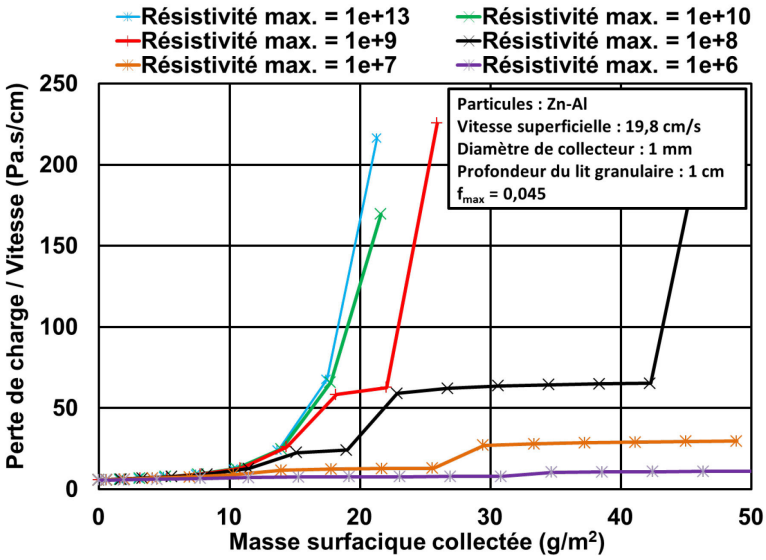


Figure III-23 Perte de charge simulée en fonction de la masse surfacique collectée pour différentes valeurs σ_{max}

Il est important de noter que le graphe ci-dessus confirme les explications données précédemment à savoir qu'une plus faible valeur de σ_{max} conduit à une moins forte augmentation de la perte de charge du fait des différences de vitesses interstitielles. On remarque également, qu'au-delà de l'importance de l'augmentation de la perte de charge en fonction de la masse collectée, ces différentes courbes obtenues pour plusieurs valeurs de σ_{max} présentent également des allures variées. En effet, ces courbes affichent périodiquement des sauts de perte de charge. Ces sauts peuvent être attribués à la transition entre le moment où la fraction volumique solide de couches de voxels autour d'un ensemble de collecteurs atteint la valeur limite f_{max} et où celle localisée directement au-dessus passe d'un état « vide » à « poreux » en collectant des particules. La présence de ces sauts de perte de charge peut être par ailleurs liée aux paramètres utilisés pour ces simulations. En effet, l'écoulement étant recalculé toutes les dix injections de particules pour réduire le temps de calcul lors de cette étude de sensibilité, il se peut que la quantité de particules déposées provoque le remplissage d'un nombre important de voxels entre deux calculs d'écoulement successif (l'influence et la détermination de la fréquence de recalcul de l'écoulement sont investiguées dans la suite de ce chapitre). En effet, le fait que l'écoulement ne soit pas assez fréquemment recalculé favoriserait le dépôt de particules à des endroits du lit granulaire qui, de par la présence préalable d'un dépôt, ne seraient en réalité peu ou pas accessibles.

Cette étude de l'influence de σ_{max} montre également, qu'au-delà d'une certaine valeur, les différences d'évolution de perte de charge deviennent minimes. Les courbes correspondant à des valeurs de σ_{max} de 10^{10} $kg.m^{-3}.s^{-1}$ et de 10^{13} $kg.m^{-3}.s^{-1}$ demeurent très proches pendant toute la durée du colmatage.

Cette convergence des résultats à f_{max} constant correspond au fait qu'à partir d'une valeur donnée de σ_{max}, la fraction du débit passant dans les voxels poreux devient presque nulle et que celle passant dans l'espace libre des pores atteint un maximum. Par définition, le paramètre σ_{max} correspond au rapport entre la perméabilité minimum que peut prendre un voxel lorsque sa valeur de f_{max} est atteinte et la viscosité du fluide. Ainsi, si f_{max} a pu être assimilée à la compacité d'un gâteau de particules nanostructurées, alors il semble aussi cohérent d'en utiliser la valeur de perméabilité pour le calcul de σ_{max}. Dans la mesure où le but est de trouver un outil prédictif du comportement des lits granulaires en cours de colmatage, σ_{max} doit pouvoir être calculée et non-mesurée ou utilisée comme paramètre d'ajustement.
Pour y parvenir, il est nécessaire de procéder par identification entre les modèles de perte de charge de gâteaux de nanoparticules et la loi de Darcy qui décrit la perte de charge d'un milieu poreux (équation 33) :

$$\Delta P = \frac{\mu}{K} UZ = \sigma_{max} UZ \qquad 33$$

Avec ΔP la perte de charge, Z la profondeur du milieu poreux et K sa perméabilité. En procédant ainsi avec le modèle de Thomas et al. (2014), l'expression suivante de σ_{max} peut être obtenue:

$$\sigma_{max,Th.} = \frac{\mu\, 96\, \alpha_d^{0,5} \left(1 + 56\alpha_d^3\right)}{Cu\, d_{pp}^2} \qquad 34$$

Pour une valeur de diamètre de particules primaires composant les particules nanostructurées (d_{pp}) d'environ 9 nm (Charvet et al. 2015), une valeur de $\sigma_{max,Th.}$ de 1,98x10^{11} kg.m^{-3}.s^{-1} a été calculée. Les modèles de perte de charge pouvant menées à des valeurs différentes de perméabilité selon les cas, les valeurs de σ_{max} ont également été calculées avec les modèles de perte de charge de Kozeny-Carman et de Mauret-Renaud (Mauret et Renaud 1997b).

Pour celui de Kozeny-Carman, on trouve l'expression suivante :

$$\sigma_{max,KC.} = \frac{\mu\, 36\, h_k\, {\alpha_d}^2}{\alpha_d^3\, d_{pp}^2} \qquad 35$$

Avec h_k la constante de Kozeny-Carman calculée grâce à la relation de Carroll. Cette relation permet de tenir compte du fait qu'à faible compacité (i.e., inférieure à 0,3) h_k ne puisse plus être considérée comme une constante environ égale à 5 :

$$h_k = 5 + \exp\left(14\left((1 - \alpha_d) - 0{,}8\right)\right) \qquad 36$$

Le modèle de Mauret-Renaud permet quant à lui d'obtenir cette autre forme de l'équation de σ_{max} :

$$\sigma_{max,MR.} = \frac{18\, \mu\, \alpha_d\, \tau^2}{(1 - \alpha_d)^2\, d_{pp}^2} \qquad 37$$

Avec τ la tortuosité calculée par : $\tau = 1 + 1{,}16\alpha_d^{0,5}$ (Mauret et Renaud 1997b). Dans le cas des deux derniers modèles, les valeurs de σ_{max} obtenues sont de 1,39x10^{10} et 3,81x10^{11} kg.m^{-3}.s^{-1}, respectivement. Le fait que toutes les valeurs de σ_{max} soient supérieures à 10^{10} kg.m^{-3}.s^{-1} montre d'après la Figure III-23 que le choix du modèle pour le calcul de σ_{max} influe peu sur les résultats de simulation. Néanmoins, il est important de noter que le modèle de Kozeny-Carman est un type de modèle capillaire alors que ceux de Thomas ou de Mauret-Renaud sont particulaires. La différence entre ces deux types de modèle réside dans le fait que le premier est basé sur le calcul de l'écoulement par la loi de Poiseuille dans les pores formés par un milieu granulaire alors que les

modèles particulaires utilisent le calcul de la force de trainée s'exerçant sur chacun des éléments constitutifs du milieu poreux pour accéder à sa perte de charge. D'après la littérature (Mauret et Renaud 1997a; Punčochář et Drahoš 2000), il apparait qu'une limite d'applicabilité en termes de compacité du milieu poreux existe entre ces deux types de modèles, les modèles particulaires devant être préférentiellement appliqués pour des compacités inférieures à 0,3. D'après cette limite, il est souhaitable d'utiliser pour le calcul de σ_{max} le modèle de Thomas ou de Mauret-Renaud. Dans la mesure où la relation de compacité des dépôts (équation 31) est issue de la même étude, il a été décidé par cohérence d'utiliser celui de Thomas.
Alors que les deux paramètres précédents (σ_{max} et f_{max}) concernent des grandeurs physiques, ceux dont l'influence est étudiée par la suite sont d'ordre numérique et permettent d'optimiser le temps de calcul nécessaire à l'obtention de résultats suffisamment précis.

III.2.4.2.3 Influence de la multiplicité

Du fait de la concentration importante des aérosols étudiés ($2x10^8$ particules/cm^3) et des dimensions du domaine de simulation (de l'ordre de plusieurs centaines de millions de voxels), le calcul individuel des trajectoires de toutes les particules afin d'obtenir leur position de dépôt est utopique si l'on souhaite conserver un temps de calcul de l'ordre de la semaine. Afin de limiter cette durée, une option est disponible dans le mode FLT de FilterDict® permettant de définir un nombre maximum de trajectoires calculées par type de particules ($n_{i,max}$), (i.e., par classe granulométrique), durant une injection. La définition de ce nombre de trajectoires permet de calculer la multiplicité. Cette dernière est définie comme le nombre de particules d'une classe granulométrique donnée représentées par une particule de la même classe dont la trajectoire est effectivement calculée par GeoDict®.

$$M_i = \frac{n_{t,i}}{n_{i,max}} \qquad 38$$

Où M désigne la multiplicité, i la $i^{ème}$ classe granulométrique et n_t le nombre total de particules simulées lors d'une injection. Par exemple, si dans une classe granulométrique le nombre total de particules à simuler est de 10^6 et que le nombre maximum de trajectoire devant être calculées est fixé à 10^4 alors la multiplicité appliquée à cette classe est 100. Cela signifie que chaque particule dont la trajectoire est réellement calculée en représente 100 et que si l'une d'entre elles est collectée alors la masse et le volume de 100 particules sont ajoutés à l'endroit du dépôt.
Afin de s'assurer que ce paramètre n'introduise pas une erreur trop importante, un contrôle est effectué par le logiciel. Ce contrôle vérifie que pour chaque classe le volume d'une particule (V_p) multiplié par la multiplicité correspondante soit inférieur à 5% du volume d'un voxel (V_{vx}). Dans le cas contraire, une correction est appliquée en augmentant le nombre $n_{i,max}$ de sorte que cette limite de 5% soit respectée. L'effet de cette correction est observable d'après les données du Tableau III-8 qui présente pour deux valeurs de $n_{i,max}$ théoriques définies par l'utilisateur (10^4 (rouge) et 10^5 (Bleu)) :

- $M_{i,th}$, la multiplicité théorique de chaque classe granulométrique calculée à partir de la valeur de $n_{i,max}$ définie par l'utilisateur.
- La fraction du volume d'un voxel représentée par le produit V_p x $M_{i,th}$ pour chaque classe granulométrique.
- $n_{i,max,sim}$, les valeurs du nombre de trajectoires effectivement simulées par GeoDict® (après correction par le logiciel s'il y a lieu)
- $M_{i,sim}$, la multiplicité calculée à partir des valeurs $n_{i,max,sim}$.
- La fraction du volume d'un voxel représentée par le produit V_p x $M_{i,sim}$ pour chaque classe granulométrique.

Tableau III-8 Données de multiplicité pour deux nombres maximum de trajectoires calculées par classe granulométrique (10^4 en rouge, 10^5 en bleu)

Diamètre des particules (nm)	$n_{t,i}$	$M_{i,th}$ (théorique)	$(V_p \times M_{i,th})/V_{vx}$ (%)	$n_{i,max,sim}$ (simulée)	$M_{i,sim}$ (simulée)	$(V_p \times M_{i,sim})/V_{vx}$ (%)
14,2	5,14E+07	515	0,001	9,99E+04	515	0,001
17,3	2,60E+06	26	0,0001	9,98E+04	26	0,0001
25,9	6,12E+07	612	0,008	1,00E+05	612	0,008
31,6	1,50E+09	14 957	0,36	1,00E+05	14 957	0,36
38,6	-1,02E+09	-10 175	-0,45	1,00E+05	-10 175	-0,45
47,2	1,02E+07	103	0,008	9,91E+04	103	0,008
57,7	-5,63E+08	-5 632	-0,83	1,00E+05	-5 632	-0,83
70,4	1,88E+09	18 800	***5,05***	1,01E+05	18 574	***5,00***
14,2	5,14E+07	5 143	0,01	1,00E+04	5 143	0,01
17,3	2,60E+06	260	0,001	9,98E+03	260	0,001
25,9	6,12E+07	6 120	0,08	1,00E+04	6 120	0,08
31,6	1,50E+09	149 563	3,6	1,00E+04	149 563	3,6
38,6	-1,02E+09	-101 765	-4,5	1,00E+04	-101 765	-4,5
47,2	1,02E+07	1 021	0,08	1,00E+04	1 021	0,08
57,7	-5,63E+08	-56 334	-8,3	1,00E+04	-56 334	-8,3
70,4	1,88E+09	188 000	***50,5***	1,01E+05	18 574	***5,00***

Les données du Tableau III-8 montrent également que les simulations utilisées dans cette étude de sensibilité sont impactées de manière identique par le problème de codage d'une variable mentionnée précédemment. Ces données pointent par ailleurs ce qui pourrait apparaitre comme un défaut de l'interface. En effet, le fait que l'utilisateur renseigne un nombre maximum de trajectoires plutôt que directement une multiplicité introduit une différence de traitement entre classes granulométriques. On remarque ainsi que pour une même simulation les multiplicités peuvent différer de trois ordres de grandeurs d'une classe à une autre et donc que la distribution granulométrique de l'aérosol réel à simuler n'est pas respectée en activant ce mode dans GeoDict®. De ce fait, certains diamètres de particules peuvent être surreprésentés lors de la formation du dépôt.

La Figure III-24 permet de visualiser l'influence d'une variation de $n_{i,max}$ sur les résultats de simulation et de mettre en évidence qu'une augmentation de ce paramètre et donc une baisse de la multiplicité engendre une croissance plus précoce de la perte de charge. Ce comportement est cohérent avec la description faite précédemment du traitement par GeoDict® de la multiplicité. En effet, si pour chaque classe granulométrique, le volume d'un nombre de particules égal à $n_{i,max} \times M_i$ est ajouté à l'endroit du dépôt d'une particule dont la trajectoire est réellement suivie, alors plus la multiplicité est importante plus le dépôt est localisé pour une même masse déposée. Cette moindre répartition du dépôt engendre alors une baisse du nombre de voxels contenant un dépôt et donc une augmentation plus tardive de la vitesse interstitielle (i.e., de la perte de charge). Enfin, il faut noter que les deux valeurs utilisées de $n_{i,max}$ ne sont pas adéquates mais permettent de visualiser l'effet de ce paramètre. La valeur optimale devrait correspondre à la valeur minimale pour laquelle des variations des résultats de simulation ne seraient plus observées.

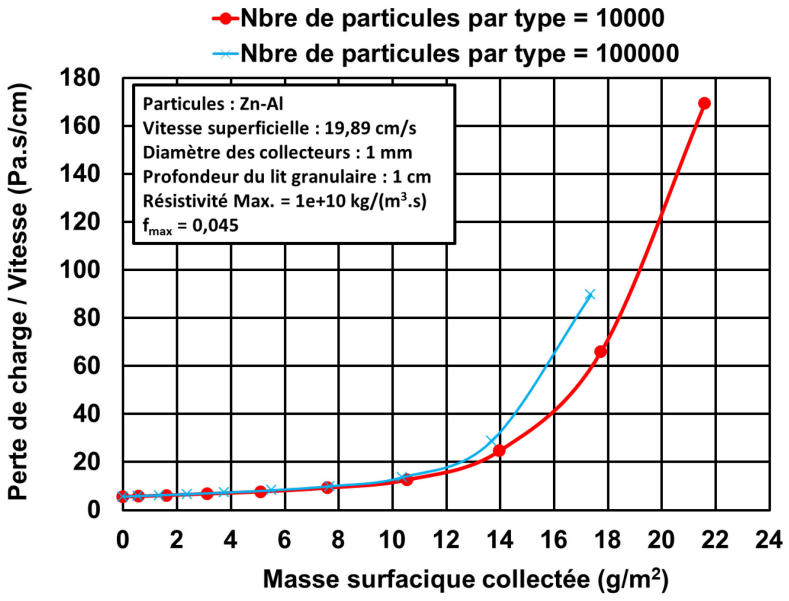


Figure III-24 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour deux valeurs de $n_{i,max}$ (10^4 et 10^5)

Il est ainsi probable qu'il faille augmenter $n_{i,max}$ pour obtenir des résultats fiables. D'après d'autres simulations réalisées avec le mode FLT de FilterDict® et traitant du colmatage de filtres plissés (Cheng et al. 2013), des résultats satisfaisants ont pu être obtenus pour une valeur de $n_{i,max}$ conduisant à une multiplicité de 3500, soit environ 5 fois plus faible que la multiplicité appliquée aux deux classes les plus représentées dans le Tableau III-8 pour $n_{i,max} = 10^5$. Pour atteindre cette valeur de multiplicité dans ces deux classes, il faudrait augmenter $n_{i,max}$ d'environ un facteur 5. Bien qu'aucune formule ne donne directement la valeur optimale de $n_{i,max}$, une méthode d'estimation peut cependant être proposée. Comme mentionné précédemment, une valeur trop faible de $n_{i,max}$ introduit de façon artificielle un dépôt préférentiellement localisé dans certains voxels et donc un biais dans l'évolution des performances en fonction de la masse collectée. Il convient de définir un $n_{i,max}$ suffisamment important pour qu'aucun voxel ne soit discriminé à chaque nouvelle injection. Pour ce faire, il faudrait que $n_{i,max}$ soit au minimum égal au nombre de voxels composant la surface de l'ensemble des collecteurs. Le nombre de collecteurs dans le domaine de simulation étant un paramètre d'entrée lors de la génération des lits granulaires, il suffit de connaitre le nombre de voxel composant la surface externe d'un collecteur ($N_{Vx,c,s}$). Ce nombre est environ égal au double du nombre de voxels formant la section à l'équateur d'un collecteur. Il peut être obtenu dans GeoDict® via le mode de visualisation en coupe bidimensionnelle (Figure III-25). Dans l'exemple de la Figure III-25 (diamètre de collecteur = 1 mm et taille de voxels = 5 µm), $N_{Vx,c,s}$ est de 62844 Voxels. Dans le cas d'un lit granulaire de 11 mm de profondeur composé de 53 collecteurs, $n_{i,max}$ devrait alors au minimum être égal à 53 x 62844 soit $3{,}33 \times 10^6$. Pour la classe granulométrique la plus représentée dans le Tableau III-8, cette valeur de $n_{i,max}$ conduirait à une multiplicité maximum de 565.

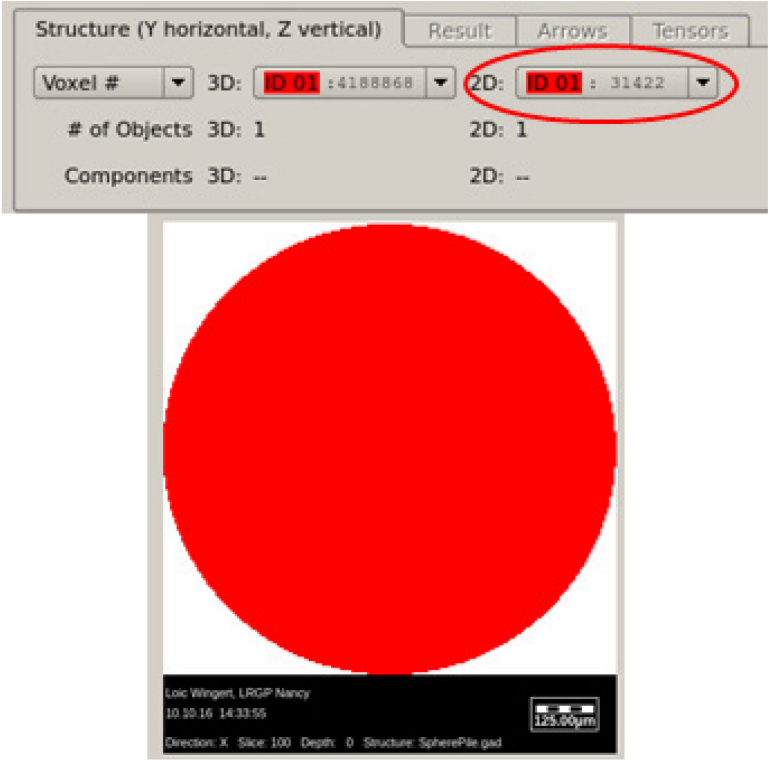


Figure III-25 Collecteur en coupe bidimensionnelle au niveau de son équateur et nombre de voxels le composant (Diamètre du collecteur = 1 mm, Taille des voxels = 5 µm)

Bien que réalisable, cette forte diminution de la multiplicité (30 fois moins élevée que pour $n_{i,max}=10^5$) ferait fortement croître le temps de calcul, probablement de plusieurs jours voire semaines à simulation et ressources identiques. A titre d'exemple, l'augmentation de $n_{i,max}$ de 10^4 à 10^5 a fait progresser le temps de simulation de 3,83 à 5,5 jours soit, ramené au nombre total d'injections, de 1,02 à 1,32 heures.

III.2.4.2.4 Influence du critère de convergence

Lorsque l'écart de perméabilité du lit granulaire entre deux itérations successives du solveur devient inférieur à une certaine valeur définie par l'utilisateur, appelée « précision », dans l'interface du logiciel, la simulation a convergé et est arrêtée. Ce critère de précision est fixé par défaut à 10^{-4}, mais pour optimiser le temps de calcul et trouver un meilleur compromis entre la précision des résultats et le temps de calcul, il est possible qu'une valeur plus importante (i.e. 10^{-3}) soit suffisante. Pour étudier l'influence de ce paramètre sur les résultats, une comparaison a été effectuée pour deux simulations ne variant que par la valeur (10^{-4} et 10^{-3}) du critère de précision (Figure III-26). D'après cette comparaison, il apparait dans la phase initiale de faible augmentation de la perte de charge que la variation du critère de convergence n'a aucun effet sur les résultats. Cependant, à partir d'un certain niveau de colmatage, la variation de ce paramètre génère des divergences non-négligeables. D'après la figure ci-dessous, un écart de perte de charge de 17 % est introduit pour une masse surfacique collectée d'environ 21,5 g/m^2. Cette divergence s'accroissant par ailleurs au fur et à mesure du colmatage, le choix de conserver la valeur par défaut (10^{-4}) de ce critère de convergence a donc été privilégié.

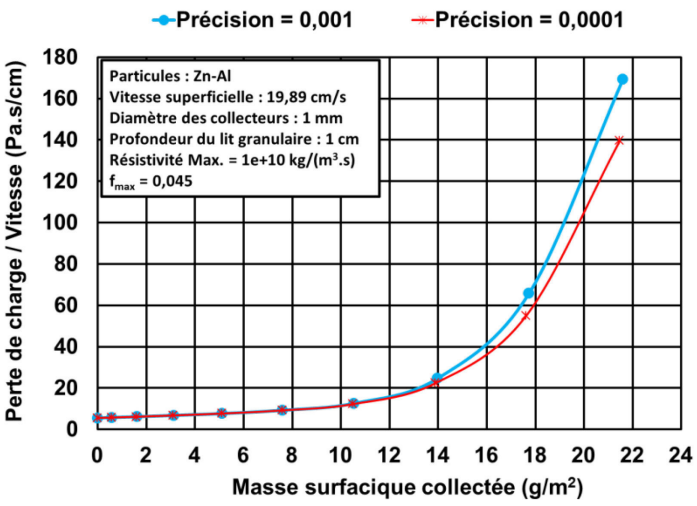


Figure III-26 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour 2 valeurs du critère de convergence (10^{-4} et 10^{-3})

III.2.4.2.5 Fréquence de calcul de l'écoulement

Pour que l'influence de la modification de la structure interne du lit granulaire au cours du colmatage sur l'écoulement et les trajectoires des particules soit rigoureusement prise en compte, il faudrait que l'écoulement soit recalculé après chaque injection. Bien que cela soit déconseillé, il peut néanmoins être envisagé d'après le guide d'utilisation du module FilterDict® de recalculer l'écoulement après quelques injections, tout en sachant que cela nuirait sensiblement à la précision des résultats. Pour un même écoulement, les particules injectées après la première injection ayant des trajectoires ne tenant pas compte du dépôt formé lors de cette dernière pourraient être collectées préférentiellement dans certains voxels. Ce dépôt de forme erronée introduirait alors une erreur dans le re-calcul de l'écoulement et des trajectoires des particules des injections suivantes. Cela conduirait alors à une erreur supplémentaire sur la localisation du dépôt. Le cumul de ces erreurs sur la répartition du dépôt et l'écoulement se répercutant sur l'ensemble de la simulation colmatage, les résultats devraient alors diverger avec l'augmentation du nombre d'injections par écoulement. Cette divergence des résultats est mis en évidence par la Figure III-27 représentant l'évolution de la perte de charge au cours du colmatage pour 4, 5 et 10 injections par écoulement.

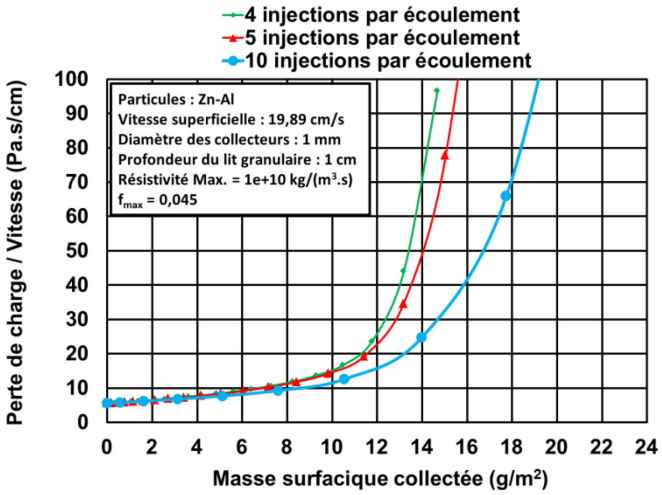


Figure III-27 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour différents nombres d'injections par écoulement (4, 5, 10)

Les conditions des simulations précédentes étaient telles que le temps de calcul aurait été très important pour 1, 2 et 3 injections par écoulement. Il a donc été décidé de diminuer le diamètre des collecteurs et la vitesse interstitielle de façon à augmenter l'efficacité de collecte et donc réduire la durée de colmatage et le temps de calcul. La Figure III-28 confirme ainsi qu'une différence significative entre les résultats de simulation est introduite dès lors que l'écoulement n'est pas recalculé après chaque injection.

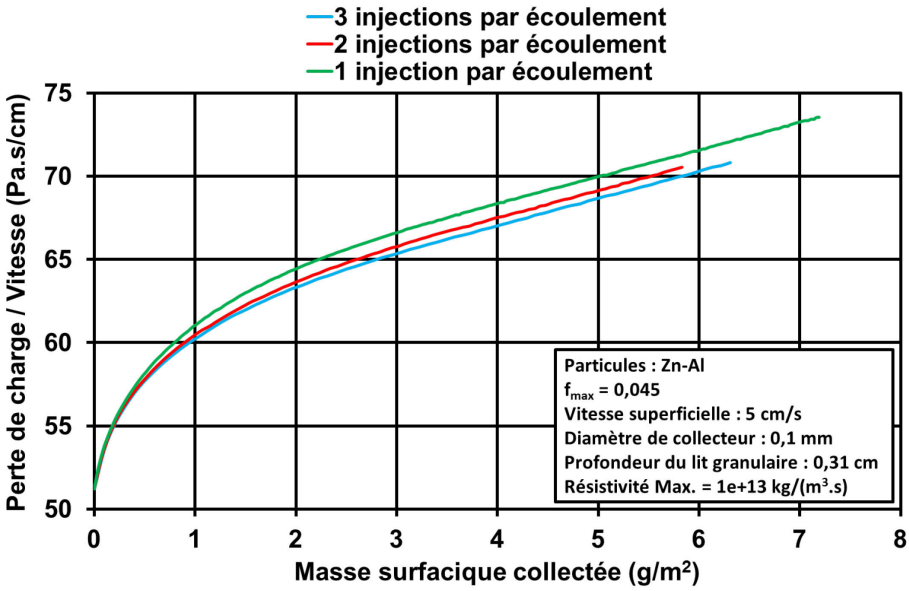


Figure III-28 Perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée pour différents nombres d'injections par écoulement (1, 2, 3)

On remarque également que les allures des courbes d'évolution de la perte de charge en cours de colmatage représentées sur la Figure III-27 et Figure III-28 différent significativement. En effet, on constate que les courbes sont concaves dans le premier cas et convexe dans le deuxième. L'une des hypothèses pouvant être avancée est que les courbes de la Figure III-27 représentent uniquement les deux premières phases (A et B, Chapitre 2) de la filtration en profondeur tandis que celles de la Figure III-28 représentent les trois phases décrites au Chapitre 2. D'après cette hypothèse, la convexité de ces courbes correspondrait au début de la phase C qui présente par ailleurs une évolution linéaire. La phase A de faible croissance de la perte de charge ne serait en revanche pas ou peu visible du fait de la configuration utilisée en termes de diamètre de collecteurs (0,1 mm), de vitesse superficielle (5 cm/s), de résistivité (10^{13} $kg.m^{-3}.s^{-1}$) et de concentration des fumées de métallisation. En effet, dans ces conditions l'efficacité initiale de collecte est très élevée (environ 90%) et la capacité de rétention (i.e., la quantité maximale des particules retenue au début de la phase C) est très faible.

Dans le cadre de notre étude, il apparait également que le temps total de simulation est majoritairement fixé par le calcul des trajectoires et non par celui de l'écoulement.
En effet, le temps de calcul des trajectoires des particules d'une injection lors des trois simulations présentées sur la Figure III-28 était d'environ 1h20 alors que celui du calcul des écoulements n'excédaient pas 25 min. En considérant ces temps de calcul et l'erreur pouvant être introduite, il semble dès lors plus pertinent de recalculer dans notre cas l'écoulement après chaque injection de particules.

III.2.4.2.6 Influence de la durée d'une injection de particules

Une injection de particules est équivalente à un intervalle de temps durant une expérience. En fonction de la concentration de l'aérosol et du débit, un certain nombre de particules par seconde sont transportées vers l'entrée du lit granulaire. Ce paramètre forme, avec le nombre maximum de trajectoires calculées par classe granulométrique ($n_{i,max}$) et le nombre d'injections par écoulement, un triptyque influençant la répartition du dépôt en surface des collecteurs. Pour être représentatif de la réalité, l'injection devrait être idéalement définie pour correspondre expérimentalement à un intervalle de temps durant lequel l'effet des particules déposées sur l'écoulement (i.e., perte de charge) serait négligeable.

Expérimentalement, l'efficacité de collecte augmentant au cours du colmatage, la masse déposée pendant un temps donné s'accroît également. Il a par ailleurs été observé au chapitre précédent que le taux d'accroissement de la perte de charge pour un même incrément de masse déposée augmente au cours du colmatage. D'après ces observations, l'injection pourrait donc représenter expérimentalement un intervalle de temps plus long en début qu'en fin de colmatage. Afin de limiter l'erreur liée à ce paramètre, on peut proposer de le définir en respectant plusieurs critères. En faisant l'hypothèse qu'un dépôt de particules se fait de façon uniforme en surface des collecteurs par diffusion brownienne, le premier critère pouvant être fixé est que la modification de la fraction volumique solide d'un voxel (f) liée aux particules s'y étant déposées lors d'une injection ne puisse pas représenter plus de x% de la valeur de f_{max}. D'après l'équation 30, ceci permet de s'assurer que la résistivité (σ) d'un voxel n'augmente pas de plus de x% de la résistivité maximum d'un voxel (σ_{max}) au cours d'une injection. Dans le cas d'un dépôt homogène sur toute la profondeur du filtre, il suffit pour respecter ce premier critère que le volume total de particules déposées soit toujours au maximum égal à x% du volume total de particules que peut contenir le lit granulaire pour une valeur de f_{max} donnée. Ce volume ($V_{p,max}$) est obtenu par :

$$V_{p,max} = f_{max} * V_{vx} * N_{vx} * \epsilon_{LG} \qquad 39$$

Avec V_{vx} le volume d'un voxel, N_{vx} le nombre de voxel du domaine correspondant au lit granulaire. Cependant, le cas particulier d'un dépôt homogène sur toute l'épaisseur d'un lit granulaire n'est valable que pour de faibles efficacités et/ou proche de l'état initial, car au fur et à mesure du colmatage le profil de pénétration est modifié et les particules sont alors retenues de plus en plus proches de la surface et réparties dans une couche dont l'épaisseur (z_c) diminue au cours du colmatage. Pour que le critère de x% défini précédemment soit respecté sur toute la durée du colmatage, il faut donc recalculer le seuil $V_{p,max}$ pour le cas le plus limitant ($V^{100\%}_{p,max}$). Ce calcul revient à modifier dans l'équation 39 le nombre de voxels ($N_{vx,100\%}$) constituant la couche la plus épaisse ($z_{c,100\%}$) dans laquelle le dépôt peut être considéré comme uniforme lorsque l'efficacité approche 100%.

Prenons à titre d'exemple, un lit granulaire simulé de 11 mm de profondeur, de section 2 mm x 2 mm et composé de collecteurs de 1 mm de diamètre. Dans cet exemple, ce lit est utilisé pour filtrer un aérosol de Zn-Al (concentration 75 mg/m^3) à un débit de 15 l/min et a par conséquent une efficacité initiale de collecte de l'ordre de 10%. Les voxels mesurent quant à eux 5 µm de côté. Le volume maximum de particules déposées dans un voxel lors d'une injection est fixé à 10% du volume solide maximum qu'il peut contenir (avec f_{max} = 0,0542).

D'après la méthode ci-dessus (équation 39) et les données de cet exemple, une durée d'environ 300 secondes par injection serait suffisante à l'état initial. Ce temps de calcul initial est obtenu par l'équation suivante :

$$dt = \frac{V_{p,max}}{E_{LG,0} Q_{p,inj}} \qquad 40$$

Avec $E_{LG,0}$ l'efficacité initiale du lit granulaire (équation 22) et $Q_{p,inj}$ le débit volumique en nombre de particules en amont du lit granulaire. Ce débit volumique est calculé à partir du diamètre équivalent en volume des particules de chaque classe granulométrique de l'aérosol filtré et de leur concentration en nombre respective.
En revanche, il faudrait réduire la durée d'injection à environ 5 secondes pour une efficacité proche de 100% si l'on suppose une valeur de $z_{c,100\%}$ de 2 mm (i.e. deux premières couches de collecteurs). Ce temps de calcul est obtenu par la formule suivante :

$$dt = \frac{V_{p,max}^{100\%}}{Q_{p,inj}} \qquad 41$$

III.2.4.3 Comparaison des simulations de colmatage avec les résultats expérimentaux

La validation du code de calcul vis-à-vis de l'état initial ayant été effectuée et les paramètres du mode FLT de FilterDict® pouvant être théoriquement déterminés a priori, une première simulation a été lancée pour être comparée aux résultats de l'expérience 2 présentés dans le chapitre 2. Les paramètres de cette simulation sont précisés dans le tableau suivant :

Tableau III-9 Paramètre de simulation de l'expérience de colmatage n°2

Diamètre des collecteurs (mm)	1 mm
Profondeur du lit granulaire (mm)	11 mm
Section du domaine de simulation (mm^2)	2 x 2
Porosité	0,37
Nombre de collecteurs	53
Vitesse superficielle (cm/s)	19,89
Matériau des particules (Masse volumique (kg/m^3))	Zn-Al (5730)
Concentration (mg/m^3)	75
Fraction volumique solide maximale des voxels - f_{max}	0,0542
Résistivité maximum d'un voxel - σ_{max} ($kg.m^{-3}.s^{-1}$)	$1{,}98 \times 10^{11}$
Fréquence de calcul de l'écoulement (n^{bre} d'injection)	1
Durée d'une injection (s)	5
Nombre maximum de trajectoires calculées par classe granulométrique	$3{,}4 \times 10^6$
Multiplicité maximale rencontrée	184
Précision	0,0001
Taille des voxels (µm)	5

Cette simulation pouvant potentiellement durer longtemps (plusieurs semaines), elle a été réalisée sur une station de calcul différente et plus performante que celle décrite en début de chapitre : 32 cœurs cadencés à 2,5 GHz, 512 Go de RAM. En dépit de l'augmentation de la puissance de calcul, cette simulation n'a pas pu être menée à son terme au moment de la rédaction de ce manuscrit.

En effet, après plus d'un mois et demi (50 jours) de calcul, seul 600 s de colmatage ont pu être simulée soit 6 fois moins que l'ordre de grandeur de la durée expérimentale d'un colmatage dans les mêmes conditions opératoires. Même si aucune validation du code de calcul n'a pu encore être effectuée, il apparait d'ores et déjà que l'utilisation de la CFD pour la simulation de colmatage par des nanoparticules de domaines de grandes tailles, tels que les lits granulaires, se heurte encore à un temps de calcul qui semble prohibitif, i.e., estimé à plus de 5 mois avec la station de calcul utilisée. Néanmoins, la simulation sera poursuivie afin de comparer l'évolution des performances simulée à celle obtenue expérimentalement.

III.3 Conclusion

Dans ce chapitre, l'apport de la simulation pour la prédiction du comportement des lits granulaires lors de la filtration d'aérosols de nanoparticules a été étudié avec le logiciel GeoDict®, un code de calcul spécialement dédié à la simulation et à l'analyse des propriétés des milieux poreux. Cette étude a tout d'abord consisté à trouver le mode le plus adapté à la génération d'empilements compacts de sphères. Il a pu être observé qu'une certaine valeur du ratio (ϕ) entre la profondeur du lit granulaire et le diamètre des collecteurs devait être respectée pour former des empilements aléatoires réalistes, i.e., dont la porosité finale est indépendante des random seeds et conforme aux valeurs théoriques. Après avoir déterminé les équations d'écoulement à résoudre et le type de solveur sur la base de données expérimentales et de comparaison entre différentes simulations, une étude de sensibilité a permis d'étudier l'influence de la taille de voxels sur les résultats d'efficacité et de perte de charge initiale. Des comparaisons entre des simulations identiques mais réalisées sur des lits granulaires générés pour différents random seeds ont également été effectuées pour observer la dispersion de résultats. Il a été notamment observé qu'elle pouvait être réduite à environ 2% si la condition sur la valeur de ϕ était respectée lors de la génération des empilements. Ce résultat a confirmé la représentation réaliste d'empilements aléatoires par les lits granulaires simulés et donc permis de s'affranchir à l'état initial de l'effet des random seeds à partir de $\phi \approx 15$. Cette première étude de sensibilité a finalement permis de déterminer les valeurs adéquates des différents paramètres requis pour la simulation de l'état initial de la filtration par lits granulaires. Les comparaisons des simulations avec des expériences de filtration de particules idéales (NaCl – sphériques) et de particules nanostructurées (Zn-Al – agglomérats non-sphériques) ont montré la validité du code de calcul vis-à-vis de l'état initial. La validation des simulations concernant les particules nanostructurées a également permis de confirmer le choix de représenter les agglomérats par des sphères équivalentes en volume.

Dans un second temps, une autre étude a été menée afin de connaitre l'influence des variables spécifiques à la simulation de colmatages complets grâce au mode «Filter Life Time » de GeoDict®. Parmi ces paramètres se trouvent des grandeurs physiques calculables grâce à des modèles de la littérature (résistivité et compacité du dépôt) mais aussi d'autres permettant d'optimiser le temps de calcul par rapport à la précision requise des résultats (multiplicité, nombre d'injections par écoulement, durée d'une injection). Ces paramètres ont notamment pu être déterminés sur la base de raisonnements consistant à trouver des valeurs limites au-delà desquelles ils conduiraient à une modification sensible des résultats. Les réglages des simulations pouvant ainsi être théoriquement connus a priori, une simulation de colmatage a pu être démarrée afin d'être comparée à des résultats expérimentaux du chapitre précédent. Malheureusement, cette simulation est actuellement toujours en cours et ce malgré une station de calcul possédant 32 cœurs et 512 Go de RAM. Ainsi, après plus d'un mois et demi (50 jours) de calcul, le temps de colmatage simulé est d'environ seulement 15% de l'ordre de grandeur de la durée de colmatage réelle (environ 1h).

Il n'a donc pas été possible, pour l'instant, de se prononcer quant à la validité du code de calcul pour la simulation du colmatage. Néanmoins, il semble d'ores et déjà que le temps ou bien la puissance de calcul nécessaire à ce type de simulation soit prohibitif. En effet, la durée estimée est de plus de 5 mois pour cette simulation avec la station de travail utilisée dans cette étude.
Pour pallier ce problème, il a été décidé de développer notre propre modèle devant permettre de prédire l'évolution de l'efficacité de collecte et de la perte de charge de lits granulaires en cours de colmatage par des particules ultrafines. Dans cette optique, il a été décidé d'investiguer en premier lieu la morphologie du dépôt de nanoparticules en surface de collecteurs sphériques puisque ce dernier influence directement l'écoulement (perte de charge) et par conséquent le transport de particules (efficacité de collecte). Cette étude de la structure des dépôts de PUF est présentée dans le chapitre suivant.

Références

Bémer, D., I. Subra, Y. Morele, A. Charvet, et D. Thomas. 2013. « Experimental study of granular bed filtration of ultrafine particles emitted by a thermal spraying process ». *Journal of Aerosol Science* 63 (septembre): 25–37.

Chaumeil, F., et M. Crapper. 2014. « Using the DEM-CFD method to predict Brownian particle deposition in a constricted tube ». *Particuology*, Energy storage: Materials and processes, 15 (août): 94‑106.

Cheng, L., R. Kirsch, A. Wiegmann, P. C. Gervais, N. Bardin-Monnier, et D. Thomas. 2013. « PLEATLAB: A pleat scale simulation environment for filtration simulation ». *Filtech Proceedings*.

Cheng, L., S. Rief, A. Wiegmann, J. Adler, L. Mammitzsch, et U. Petasch. 2012. « Simulation of Soot Filtration on the Nano-, Micro- and Meso-scale ». *WFC 11 Proceedings*

Drescher, C. 2013. « Performance d'un lit granulaire vis-à-vis des aérosols ultra-fins ». INRS, LRGP.

Dullien, F. A. L. 2012. *Porous Media: Fluid Transport and Pore Structure*. Academic Press.

Elmøe, T. D., A. Tricoli, J. Grunwaldt, et S. Pratsinis. 2009. « Filtration of nanoparticles: Evolution of cake structure and pressure-drop ». *Journal of Aerosol Science* 40 (11): 965‑81.

Gutfinger, C., et G. I. Tardos. 1979. « Theoretical and experimental investigation on granular bed dust filters ». *Atmospheric Environment (1967)* 13 (6): 853–867.

Linden, S., A. Wiegmann, et H. Hagen. 2015. « The LIR space partitioning system applied to the Stokes equations ». *Graphical Models* 82 (novembre): 58‑66.

Mauret, E., et M. Renaud. 1997a. « Transport phenomena in multi-particle systems—I. Limits of applicability of capillary model in high voidage beds-application to fixed beds of fibers and fluidized beds of spheres ». *Chemical Engineering Science* 52 (11): 1807‑17.

———. 1997b. « Transport phenomena in multi-particle systems—II. Proposed new model based on flow around submerged objects for sphere and fiber beds-transition between the capillary and particulate representations ». *Chemical Engineering Science* 52 (11): 1819‑34.

Mouret, G. 2008. *Étude de la filtration des aérosols nanométriques*.

Natsui, S., S. Ueda, H. Nogami, J. Kano, R. Inoue, et T. Ariyama. 2012. « Gas–solid flow simulation of fines clogging a packed bed using DEM–CFD ». *Chemical Engineering Science* 71 (mars): 274‑82.

Payatakes, A. C. 1973. *A New Model for Granular Porous Media: Applications to Filtration Through Packed Beds*. Syracuse University.

Punčochář, M, et J Drahoš. 2000. « Limits of applicability of capillary model for pressure drop correlation ». *Chemical Engineering Science* 55 (18): 3951‑54.

Shin, C. 2006. « Finite element simulation of deep bed filtration ». *Chemical Engineering Science* 61 (8): 2324‑29.

Tardos, G. I., C. Gutfinger, et N. Abuaf. 1976. « High Peclet Number Mass Transfer to a Sphere in a Fixed or Fluidized Bed ». *AIChE Journal* 22 (6): 1147–1150.

Thomas, D., F. Ouf, F. Gensdarmes, S. Bourrous, et L. Bouilloux. 2014. « Pressure drop model for nanostructured deposits ». *Separation and Purification Technology* 138 (décembre): 144‑52.

Tien, C. 2012. *Principles of Filtration*. Elsevier.

IV. Etude de la morphologie des dépôts de particules ultrafines à la surface de collecteurs sphériques

Dans le chapitre précédent, certaines limitations de la simulation numérique ont pu être mises en évidence pour la prédiction de l'évolution des performances des lits granulaires en cours de colmatage. En effet, il est notamment apparu que le temps de calcul nécessaire à la simulation de colmatages entiers de lits granulaires par des particules ultrafines pouvait s'élever à plusieurs mois et donc s'avérer prohibitif. Pour pallier ce problème, il a été décidé d'entreprendre le développement d'un modèle prédictif d'évolution de perte de charge et d'efficacité des lits granulaires en cours de colmatage par des aérosols de nanoparticules. Pour ce faire, il semble crucial de connaitre la morphologie du dépôt des PUF autour des collecteurs. En effet, les modèles existants basés sur l'efficacité unitaire de collecte ont été développés principalement pour décrire les performances initiales des lits granulaires (collecteurs vierges), or la forme du dépôt modifie considérablement l'écoulement au sein des milieux poreux et affecte par conséquent leurs performances. Malgré l'importance que revêt la connaissance de la morphologie des dépôts, il existe actuellement peu d'études expérimentales ayant trait à la visualisation de dépôts de particules microniques en surface de collecteurs sphériques et aucune concernant les dépôts de nanoparticules. Les études recensées traitent soit de la filtration d'hydrosols (particules en suspension dans un liquide), soit d'aérosols (particules en suspension dans un gaz).

IV.1 Etat de l'art

IV.1.1 Morphologie des dépôts de particules lors de la filtration d'hydrosols

L'une des premières études de morphologie de dépôts de particules en surface de collecteurs a été réalisée par Payatakes et al., (1981) afin de connaitre l'influence du pH et de l'ajout de polyélectrolytes sur le dépôt des particules. Lors de cette étude, les auteurs ont développé un banc d'essais pour visualiser le dépôt de particules en surface des collecteurs ainsi que l'obstruction des pores durant la phase de filtration en profondeur. Le milieu poreux utilisé dans cette étude consiste en un réseau de pores formé par des collecteurs sphériques de 685 µm de diamètre disposés selon un motif hexagonal avec une distance de centre à centre de 787 µm (Figure IV-1). Cette disposition forme donc des pores d'un diamètre minimal de 102 µm et un milieu filtrant de porosité égale à 31%. Le milieu poreux consistant en une structure photogravée placée dans une colonne transparente, ce dispositif permet de suivre visuellement, au moyen d'une caméra, l'évolution du dépôt sans interrompre l'expérience et présente donc l'avantage de ne pas perturber la structure des dépôts par diverses manipulations. Le procédé de création de la structure poreuse par photogravure présente néanmoins un inconvénient majeur. En effet, cette méthode ne permet pas de graver la structure sur une grande profondeur, cette dernière étant de 44 µm dans cette étude. Cette faible profondeur de gravure induit donc une faible largeur des pores qui pourrait modifier l'écoulement et donc la morphologie des dépôts en comparaison de ceux rencontrés dans de véritables milieux granulaires. De plus, le faible ratio entre la largeur des pores (i.e., profondeur de gravure) et le diamètre des particules utilisées dans cette étude (environ 22 pour des particules sphériques de latex de 2,02 µm), pourrait conduire à un colmatage des pores rapide et non-représentatif de la réalité qui influencerait également la structure du dépôt.

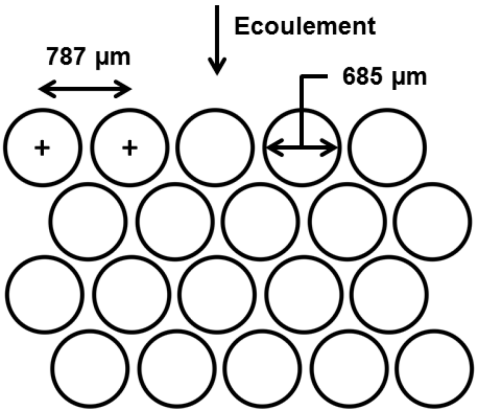


Figure IV-1 Schéma de principe du milieu poreux modèle (d'après Payatakes et al., 1981)

Ces expériences de filtration ont été réalisées à une très faible vitesse superficielle de 0,97 mm/s. Grâce à ce dispositif, les auteurs ont pu observer que les particules sont principalement collectées dans les deux premières couches de collecteurs durant les premiers instants de la filtration. Dans un deuxième temps, ces particules collectées sont souvent réentrainées par le flux de liquide en raison de l'augmentation de la résistance à l'écoulement sous la forme d'agglomérats se redéposant plus en aval dans le milieu poreux. Une fois redéposés, ces agglomérats augmentent rapidement en taille du fait de leur grande capacité à intercepter d'autres particules en agissant comme des collecteurs additionnels majoritairement responsables de la hausse de l'efficacité de collecte. Au fur et à mesure que le colmatage progresse, la force de trainée que subit le dépôt dans le filtre croit fortement favorisant ainsi un peu plus le réentrainement d'agglomérats qui finissent par obstruer totalement les canaux les plus étroits du réseau de pores. Malgré une résistance à l'écoulement élevée, il est important de noter que ces canaux obstrués ne deviennent pas totalement imperméables au liquide pour autant et qu'ils participent donc encore à la filtration grâce à une très grande efficacité de collecte. Au-delà du fait que cette étude concerne la filtration de suspensions liquides, le milieu poreux utilisé par les auteurs présente l'inconvénient de ne pas comporter de points de contact entre les collecteurs qui peuvent également induire des modifications de débit local et donc avoir une influence sur la croissance des dépôts.

Kusaka et al., (2010) ont étudié la morphologie de dépôts de particules sphériques de latex mesurant 1,04 et 3,6 µm en surface d'un collecteur cylindrique de 0,2 mm de diamètre. Dans ce montage expérimental le collecteur est situé au centre d'un canal de 5,3 cm de longueur et de section perpendiculaire à l'écoulement ayant pour dimensions 0,9 mm X 0,1 mm. Ce dispositif a été conçu en poly-dimethylsiloxane (PDMS) transparent permettant l'observation in-situ de l'évolution des dépôts. Ces observations dans différentes conditions de vitesses superficielles (débits) et de diamètres de particules ont été comparées sur la base de la variation du nombre de Péclet quantifiant l'importance du transfert par diffusion par rapport à celui par convection :

$$\mathrm{Pe} = \frac{\mathrm{U d_p}}{\mathrm{D_{Br}}} \qquad 42$$

Avec d_p le diamètre des particules, U la vitesse superficielle et D_{Br} le coefficient de diffusion brownienne. Cette comparaison en termes de nombre de Péclet permet d'attribuer des formes caractéristiques de dépôt pour les différents régimes de transport et de les lier aux variations de vitesse superficielle et de diamètre de particule (Figure IV-2).

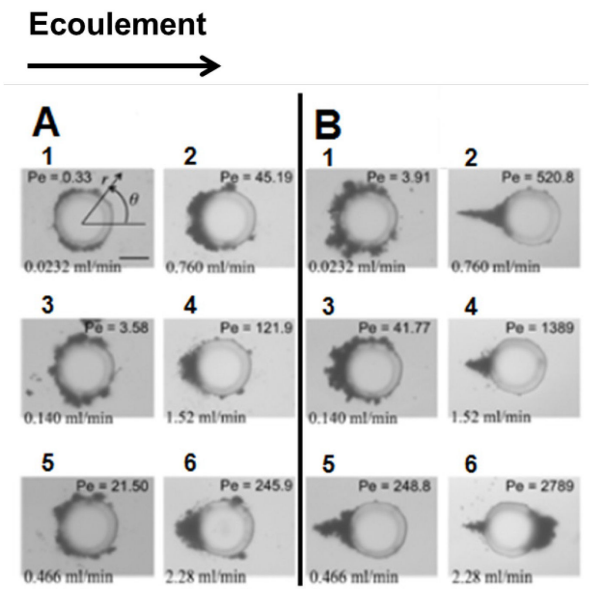


Figure IV-2 Clichés des morphologies de dépôts à différents débits (indiqués avec le nombre de Péclet correspondant) pour des particules de 1,04 µm (Gauche) et 3,6 µm (Droite) (Kusaka et al., 2010)

Les auteurs ont pu constater en premier lieu grâce aux vidéos de l'expérience que la morphologie des dépôts ne change pas au cours du temps. Dans le cas de faibles nombres de Péclet, il a été mis en évidence qu'un dépôt relativement uniforme croît en surface du collecteur excepté en aval de ce dernier (Figure IV-2 : *A-1, 3 ,5 ; B-1, 3*). Les auteurs ont expliqué ce comportement par un transport des particules à faible vitesse dominé par la diffusion brownienne. Pour des nombres de Péclet plus importants, le dépôt apparait davantage sur la face amont du collecteur prenant une forme de colonne de plus en plus marquée du fait de l'augmentation de la vitesse superficielle (Figure IV-2 : *A-2, 4, 6 ; B-2, 4, 5, 6*). Kusaka et al. attribuent cela à un mécanisme d'interception et ont également remarqué qu'au plus grand nombre de Péclet (particules de 3,6 µm et vitesse importante) un dépôt apparait en aval du collecteur (Figure IV-2 : *B-6*). Pour étayer ce travail expérimental et justifier ces différents comportements, les auteurs ont réalisé des simulations numériques (CFD) à l'état initial afin de déterminer le débit massique local de particules autour du collecteur. La répartition de débit massique obtenue pour les différents régimes s'est avérée en accord avec les morphologies de dépôt observées avec notamment une valeur proche de zéro en aval du collecteur. Le dépôt présent à cet endroit pour une des expériences a quant à lui été expliqué par la présence de recirculations liées à la grande vitesse de l'écoulement. Enfin, dans une seconde partie de l'étude les auteurs ont effectué des essais de réentrainement sur les dépôts formés auparavant en augmentant par palier la vitesse superficielle jusqu'à détacher la moitié du dépôt présent initialement. Ces essais leur ont permis d'observer qu'une vitesse dix fois moins importante était nécessaire pour atteindre ce but dans le cas des particules les plus grandes (3,6 µm de diamètre). Ce résultat est intuitivement cohérent avec le fait que plus le diamètre d'une particule est important plus elle sera soumise à d'importantes forces de trainée et de cisaillement.

Bien que l'étude de Kusaka et al. présente un dispositif innovant d'observation de la morphologie des dépôts couplé à l'apport de la simulation numérique, il convient de s'interroger sur les mécanismes de collecte évoqués. Si la diffusion brownienne et l'interception semble effectivement jouer un rôle important à faible nombre de Péclet, les dépôts en forme de colonne sur la face amont du collecteur observés pour de plus grandes vitesses de filtration sont caractéristiques de la collecte par impaction inertielle et ne semble pas explicable uniquement du point de vue du mécanisme d'interception.

Alors que les études précédentes consistaient à développer des outils ingénieux pour visualiser l'évolution de la morphologie des dépôts en surface des collecteurs, des travaux plus récents ont profité du développement de plus grandes capacités de calcul et utilisé la mécanique des fluides numérique. De telles démarches présentent l'avantage de s'affranchir du développement d'expériences souvent très complexes et permettent un accès facilité aux détails du dépôt à l'échelle de la particule. Parmi ces études, figure celle de Chang et al., (2006). Ils ont réalisé des simulations afin d'observer la morphologie de dépôts d'hydrosols browniens (particules de 1 µm de diamètre) sur un collecteur de 0,1 mm de diamètre. Les auteurs ont ainsi pu observer un dépôt non-uniforme composé de dendrites ayant tendance à se localiser sur la face amont du collecteur. Chang et al., (2008) ont élargi leurs travaux à des dépôts d'hydrosols browniens et non-browniens dans un autre type de géométrie élémentaire, le tube à étranglement (Payatakes, 1973). Ce tube est censé représenter le canal formé, dans un empilement, par deux collecteurs sphériques de 20 µm de diamètre. Deux canaux, parabolique ou sinusoïdale, ont été testés pour tenir compte des différences d'enchevêtrement des collecteurs au sein d'un empilement aléatoire. Ils ont ainsi pu observer dans tous les cas que les particules browniennes se déposaient préférentiellement à l'entrée du tube et que l'utilisation d'un pore sinusoïdal accroit ce phénomène du fait d'une pente bien plus importante en entrée d'étranglement (Figure IV-3).

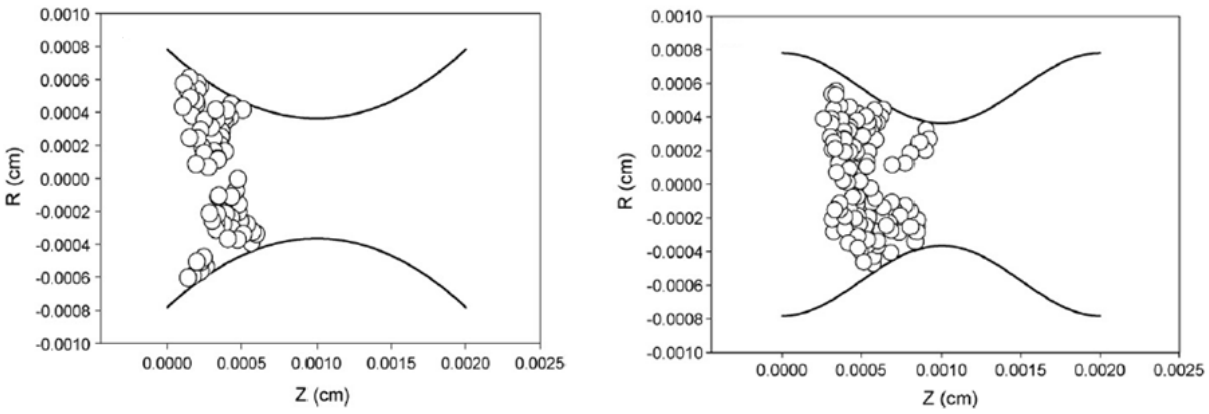


Figure IV-3 Dépôts de particules simulés dans un tube à paroi parabolique (Gauche) et sinusoïdale (Droite) (Chang et al., 2008)

Dans le cas présenté sur la figure ci-dessus, l'éventuel réentrainement d'agglomérats dû à une augmentation de la vitesse interstitielle lors de l'obstruction des canaux n'est pas pris en compte ce qui explique le fait que la croissance de dendrites puisse aller jusqu'à la formation d'un pont à travers le pore. Pour prendre en considération le phénomène de réentrainement, les auteurs ont réalisé dans un deuxième temps des simulations identiques mais en définissant une vitesse critique à partir de laquelle la force de cisaillement subie par les particules déposées devient supérieure à celle d'adhésion interparticulaire. Dans ces conditions, la formation de ponts s'est avérée impossible, les dendrites ne dépassant pas dans la plupart des cas une hauteur équivalente à 5 couches de particules (Figure IV-4).

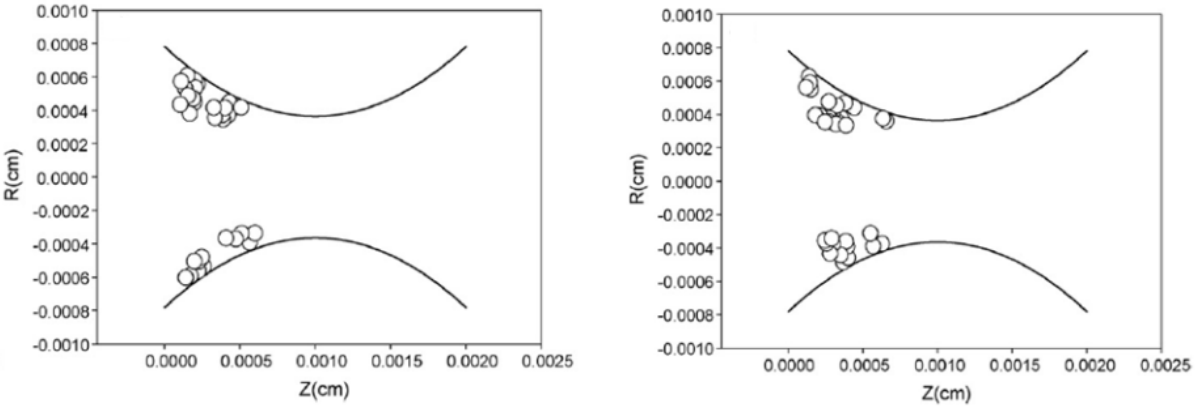


Figure IV-4 Dépôts de particules simulés avec réentrainement possible pour une vitesse superficielle de 0,2 cm/s (Gauche) et 0,1 cm/s (Droite) (Chang et al., 2008)

Les études présentées jusqu'ici concernent la filtration d'hydrosols soumis à des interactions physico-chimiques très différentes de celles rencontrées dans le cas des aérosols. Un faible nombre de résultats est par conséquent extrapolable aux aérosols de nanoparticules. Néanmoins, ces travaux représentent tout de même une source d'informations importante quant aux solutions techniques pouvant être mise en œuvre pour réaliser des observations aussi fines et complexes. A la lumière de ces différentes études, il apparait également qu'une approche combinant expériences et simulations numériques apporte un véritable avantage dans la compréhension des phénomènes.

IV.1.2 Morphologie des dépôts de particules lors de la filtration d'aérosols

L'une des principales études expérimentales sur la morphologie de dépôts d'aérosols en surface de collecteurs a été réalisée par Kasper et al., (2010). Elle concerne la structure et la densité de dépôts formés par impaction inertielle sur des fibres cylindriques dans des conditions pouvant provoquer un phénomène de rebond des particules lors du contact avec une fibre. Pour cette étude, les auteurs ont développé un dispositif expérimental consistant en une unique fibre en acier inoxydable, de diamètre 8 ou 30 µm, tendue sur un support rotatif et exposée à un aérosol de latex. En retirant ce support périodiquement, des observations sur 360° ont été réalisées sans perturber la structure du dépôt. Les observations des dépôts ont été effectuées par microscopie confocale à balayage laser. Ce type d'appareil permet d'effectuer, couche par couche, des balayages optiques d'un objet en incrémentant la profondeur de 1 µm à chaque balayage puis d'en reconstruire une image en trois dimensions. Bien que les informations sur la structure interne des dépôts ne soient disponibles que pour les couches extérieures du fait d'une grande atténuation de la lumière dans les milieux poreux, les auteurs ont tout de même pu obtenir des contours très précis, i.e., une résolution de l'ordre de 1 µm. Afin d'être dans les conditions d'une impaction inertielle prédominante, les vitesses d'écoulement mises en œuvre étaient de 1 à 6 m/s et les diamètres de particules de 1,3 µm, 2 µm, 2,6 µm et 5,2 µm. Ces configurations ont ainsi permis ainsi d'obtenir des nombres de Stokes élevés compris entre 0,3 et 9 pour lesquels en théorie les particules ne peuvent plus suivre les lignes de courant lorsque le fluide décélère à l'approche de l'amont d'un collecteur (Gutfinger and Tardos, 1979).

Grâce à ce dispositif les auteurs ont pu mettre en évidence trois régimes distincts. Le premier concerne les nombres de Stokes utilisés les plus faibles, i.e., inférieur à 1. Dans ce cas, le dépôt se fait majoritairement sur la face amont de la fibre sur une zone couvrant un angle d'environ 45°, les premières particules collectées servant alors de support à la croissance d'un dépôt dendritique plus large que haut.

A la limite supérieure de ce premier régime, le dépôt a tendance à se resserrer légèrement sous l'effet de l'augmentation de la vitesse d'écoulement. En effet, les particules quittent de plus en plus tôt les lignes de courant impliquant ainsi des collisions en amont du collecteur resserrées autour de l'axe central de l'écoulement. Les dendrites s'alignent alors sensiblement plus avec la direction de ce dernier. Pour des nombres de Stokes intermédiaires à élevés (1,5 à 3), les auteurs ont observé des dépôts plus compacts, moins hauts et couvrant plus uniformément la face amont de la fibre. Cette allure est en partie expliquée par le fait qu'à haute vitesse les particules ont une plus grande inertie et pénètrent plus profondément dans le dépôt. Cependant, un autre phénomène est responsable de cette baisse de hauteur, i.e. le phénomène de rebond. En effet, du fait d'une trop grande énergie cinétique certaines particules rebondissent au premier impact sur le dépôt présent avant de se redéposer à une position formant un angle de 45° autour de l'axe central de l'écoulement. Ce phénomène est par conséquent responsable de la formation de deux lobes de part et d'autre de la partie centrale du dépôt (Figure IV-5).

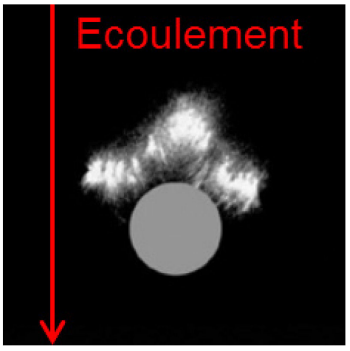


Figure IV-5 Photographie au microscope confocal à balayage laser d'un dépôt présentant des lobes latéraux liés au phénomène de rebond (issu de Kasper et al., 2010)

Dans la prolongation du deuxième régime, un autre comportement a été mis en évidence pour des vitesses et des nombres de Stokes très élevés, i.e., au-dessus de 3. Dans ce cas, les lobes disparaissent malgré le fait que les rebonds soient encore présents. L'explication avancée par les auteurs serait une énergie cinétique résiduelle après le premier rebond trop importante pour que les particules se redéposent. Les auteurs émettent également l'hypothèse que les particules peuvent être collectées dans la profondeur du dépôt après le premier rebond. Ce dernier régime de rebond serait alors la cause des dépôts compacts et fins observés durant les expériences. Afin de pouvoir évaluer les transitions d'un régime à un autre, Kasper et al. ont défini un facteur de rebond critique à partir duquel le phénomène de rebond prend place. Ce facteur correspond au produit de la vitesse par le diamètre des particules ce qui revient pour une série de données présentant une même masse volumique de particules et une même viscosité de fluide porteur à comparer le ratio du nombre de Stokes et du paramètre d'interception. Enfin lors de cette étude, les auteurs ont également déterminé la porosité des dépôts formés par les mécanismes d'impaction inertielle et de rebond. Le calcul de la porosité a été réalisé sur la base de différents volumes déposés et des contours de dépôt issus des photographies au microscope confocal. L'influence de la taille des particules sur la porosité a également été investiguée. Les auteurs ont ainsi pu montrer une diminution de la porosité avec le diamètre des particules (de 80 à 55 % pour des particules mesurant entre 1,3 µm et 5,2 µm) ainsi que sa stabilisation à partir d'une certaine quantité déposée.
Les résultats obtenus par Kasper et al. sont très utiles car ils permettent de comparer des données expérimentales aux résultats théoriques de Kanaoka et. al (1986). Les travaux de ces auteurs sont souvent utilisés comme référence dans les problèmatiques de morphologie de dépôt de particules en surface de collecteurs.

Les auteurs ont développé une relation qualitative entre la forme des dépôts et les conditions de filtration représentées par les nombres de Stokes et Péclet ainsi que par le paramètre d'interception (Figure IV-6). Ces résultats ont été obtenus intuitivement sur la base de simulations numériques et d'observations réalisées au microscope électronique à balayage.

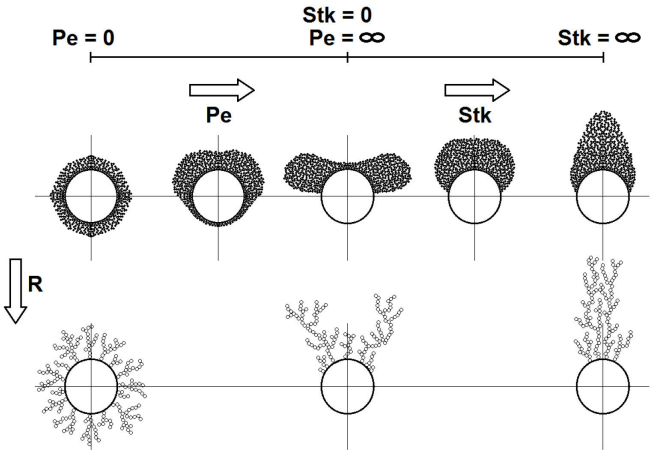


Figure IV-6 Relation schématique entre la structure d'un dépôt de particules et les conditions de filtrations en termes de paramètres adimensionnels (Pe = Nombre de Péclet, Stk = Nombre de Stokes, R = Paramètre d'interception) (d'après Kanaoka et al., 1986)

Les résultats de Kanaoka et al. sont partiellement en accord avec ceux de Kasper et al. car les auteurs ont effectivement prédit des structures compactes de plus en plus resserrées autour de l'axe de l'écoulement pour des nombres de Stokes croissants. En revanche, ils n'ont pas pris en compte le phénomène de rebond et ne font par conséquent pas mention des lobes évoqués précédemment. Une autre grande différence entre ces deux études, réside dans le critère clé faisant passer le dépôt d'une allure dendritique à compacte. En effet, Kanaoka et al. ont considéré que l'augmentation du paramètre d'interception (ratio entre le diamètre d'une particule et celui d'un collecteur) est responsable de cette transition. A l'inverse, Kasper et al. ont montré que la forme compacte des dépôts était plutôt liée à la présence de rebonds et donc déterminée par le facteur de rebond défini précédemment. Il apparait également que le paramètre d'interception ne peut pas être un bon indicateur de ces changements de morphologie car l'interception est présente en toutes circonstances dès lors que le dépôt est significatif. En effet, elle ne peut pas être réduite à néant car très rapidement l'interception particules/collecteur laisse place à un mécanisme d'interception particules/particules d'intensité plus importante, le paramètre R devenant alors proche de 1. Les travaux de Kanoaka et al. abordent également le cas des dépôts de nanoparticules soumises à la diffusion brownienne. D'après la Figure IV-6, les auteurs ont émis l'hypothèse que le mouvement brownien et donc aléatoire des nanoparticules à travers les lignes de courant devrait conduire à une collecte isotrope et générer un dépôt en couche uniforme recouvrant entièrement la surface des collecteurs.

Dans le domaine de la filtration d'aérosols, un certain nombre d'études numériques a également été réalisé afin de simuler les structures de dépôt et dans certains cas leur impact sur l'aérodynamique des milieux filtrants.

Ainsi Payatakes et Tien (1976) ont développé un modèle préliminaire de croissance de dendrites idéalisées basé sur le calcul de l'écoulement autour d'une fibre cylindrique et sur certaines approximations telles qu'une filtration se faisant uniquement par interception, un aérosol de particules monodispersées ou encore une résistance mécanique des dendrites n'étant pas modifiée au cours de leur croissance.

Ce travail préliminaire a par ailleurs été proposé comme la base théorique d'une modélisation de l'évolution de la perte de charge et de l'efficacité de media fibreux en cours de colmatage. Payatakes et Tien ont ainsi observé un taux de croissance des dendrites augmentant fortement et surtout non-linéairement avec le nombre de particules les composant. Cette observation est cohérente avec le fait que les particules déjà déposées jouent le rôle de collecteurs additionnels, augmentant la capture de particules soumises uniquement au mécanisme d'interception. Il serait intéressant de comparer ce résultat avec des mesures effectuées sur des dépôts de nanoparticules. Cette augmentation de l'efficacité est par contre sans doute surestimée étant donné que l'écoulement n'est pas recalculé après dépôt des particules et correspond donc à celui déterminé initialement (collecteur vierge).

Dans une autre étude numérique, Dunnett et Clement (2012) ont simulé en deux dimensions la croissance de dépôts en surface d'une fibre au sein d'un filtre. Ces simulations ont été réalisées pour des mécanismes de collecte par diffusion brownienne ou par interception étant alternativement prépondérants. Afin de calculer l'écoulement autour d'une fibre en tenant compte des collecteurs avoisinants et d'obtenir par la suite les trajectoires des particules, les auteurs ont utilisé à l'état initial un modèle d'écoulement de type cellulaire et plus spécifiquement celui de Kuwabara (Kuwabara, 1959). Le milieu poreux est ainsi divisé en cellules identiques comprenant chacune un collecteur et sa zone de fluide associée, l'influence des collecteurs avoisinants étant prise en compte par des conditions aux limites des cellules qui diffèrent d'un modèle à un autre. Ces différents types de modèles d'écoulement sont décrits plus en détails dans le chapitre consacré à la modélisation. Dans ces simulations, les premières particules déposées forment une couche solide dont la forme varie avec le mécanisme de collecte et en fonction de laquelle l'écoulement est recalculé. A partir d'un stade de dépôt plus avancé, les auteurs ont considéré qu'il pouvait être accessible à l'écoulement dans différentes proportions selon sa porosité. Pour tenir compte de cette évolution, Dunnett et Clement ont modifié le modèle cellulaire d'écoulement en ajoutant, aux deux zones d'origine (fibre et enveloppe de fluide), une zone poreuse supplémentaire correspondante au dépôt. D'un point de vue numérique, cela se traduit par la résolution de la loi de Darcy pour calculer l'écoulement dans le dépôt et par l'implémentation d'une condition aux limites permettant d'établir la transition d'écoulement entre ce dernier et l'enveloppe de fluide. En régime diffusionel, les simulations sont apparues en bon accord avec les résultats de l'étude de Kanaoka et al. prise comme référence. En effet, une couche de dépôt qui tend à se repartir sur une grande surface du collecteur a pu être observée indépendamment de la porosité définie pour la couche de dépôt. Ces auteurs ont néanmoins remarqué que la face aval du collecteur reste totalement vierge, ce qui au regard du diagramme de Kanaoka et al. (Figure IV-6) correspond à un régime qui ne serait pas purement diffusionnel. Ceci pourrait être lié au critère choisi par les auteurs pour marquer la prépondérance du mécanisme de diffusion. En effet, cette étude étant focalisée sur les régimes de diffusion et d'interception, la transition d'un mécanisme à l'autre a été définie par un ratio entre le paramètre d'interception et l'épaisseur de la couche de diffusion autour de la fibre. Si cette définition de la transition est pertinente, elle semble également incomplète puisque les auteurs n'ont a priori pas tenu compte des nombres de Stokes et de Péclet. Ainsi au vu de la taille des particules simulées (1µm) et des autres paramètres de simulations (diamètres des collecteurs de 40 µm, vitesse superficielle de 0,1 m/s) et bien que les auteurs ne fournissent pas la densité des particules, il est possible d'envisager que l'impaction inertielle joue un rôle minime mais non-négligeable provoquant la croissance d'un dépôt plus important sur la face amont du collecteur. Une autre hypothèse pourrait être que la taille des particules (1µm) engendre une faible diffusivité brownienne et fasse ainsi augmenter le nombre Péclet. Ces deux hypothèses seraient en accord avec le diagramme de Kanaoka et al. et pourraient expliquer les formes de dépôts observées par Dunnett et Clement.

Concernant les simulations en régime d'interception, les auteurs ont obtenu des résultats différant sensiblement de l'étude de Kanaoka et al. En effet dans les conditions choisies, la multiplication par 5 de la vitesse superficielle (0,5 m/s) conjuguée à la division par 2 du diamètre de la fibre (20 µm) conduisant à une augmentation du nombre de Peclet et du paramètre d'interception auraient dû produire un dépôt s'aplatissant au centre de la face amont du collecteur, un phénomène n'ayant pas été observé par Dunnett et Clement. Ces derniers ont expliqué cette différence par un biais lors de la simulation de la couche initiale de dépôt. En effet, ils se sont aperçus qu'en démarrant les simulations à partir d'une couche initiale de dépôt prédéfinie prenant une apparence conforme à la Figure IV-6, le dépôt final conservait cette même morphologie. Ainsi lors de ce type d'étude, il apparait crucial de simuler le plus fidèlement possible les premiers instants de la croissance des dépôts car cela détermine leur allure finale. Cette conclusion est en accord avec l'observation faite par Kusaka et al. qui ont observé une morphologie constante du début à la fin des expériences.
Alors que les différentes études présentées concernant les aérosols traitaient principalement de particules microniques, Elmøe et al. (2009) ont utilisé la simulation numérique afin d'observer la formation de dépôts de nanoparticules de 50 nm au travers d'un capillaire droit de quelques micromètres de diamètre (1 à 4 µm). Ces dimensions permettent de s'assurer d'une collecte ne se faisant que par diffusion brownienne. En termes de structure de dépôt, les auteurs ont retrouvé par leurs simulations les mêmes dendrites aux allures fractales que celles observées dans les études précédentes (Figure IV-7). On remarque également sur la figure suivante que les nanoparticules simulées sont parfaitement sphériques et forment donc des arrangements idéaux, contrairement aux agglomérats nanostructurés, i.e., composés de particules primaires de taille nanométrique, impliqués dans la majorité des problèmes de filtration.

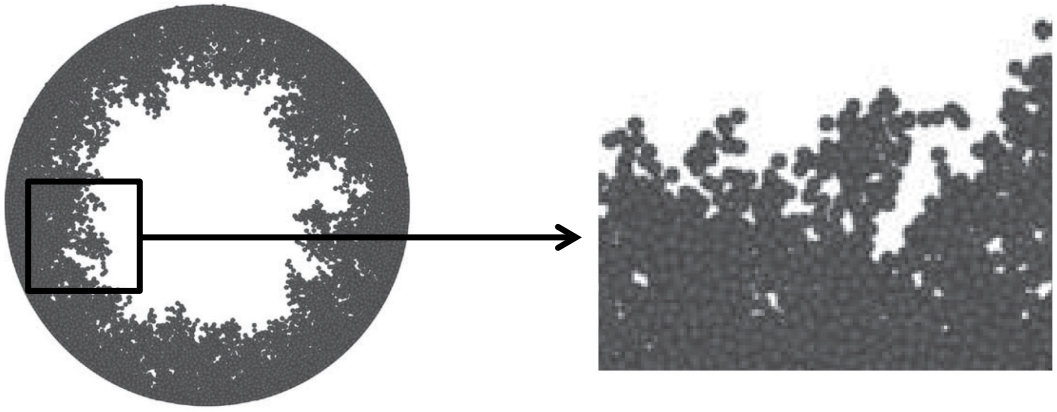


Figure IV-7 Illustration de la structure fractale des dépôts simulés de nanoparticules (Elmøe et al., 2009)

Concernant la cinétique de colmatage, Elmøe et al. ont mis en évidence un dépôt en trois phases menant à une obstruction complète du capillaire et à la formation d'un gâteau de particules (Figure IV-8). La première phase est caractérisée par un dépôt uniforme ne se faisant qu'à l'intérieur du capillaire sous l'effet de la diffusion brownienne. Dans un deuxième temps, un dépôt mixte se forme dans le capillaire et à son entrée menant graduellement à son obstruction sous la forme d'un cône s'élevant à l'extérieur du capillaire. La formation de ce cône est expliquée par un dépôt se faisant simultanément au-dessus des couches déjà présentes notamment par diffusion et au centre de la zone libre du capillaire par un mécanisme d'interception interparticulaire. Le rétrécissement de la section non-obstruée du capillaire est attribué à ce deuxième mécanisme. Enfin, la dernière phase voit la croissance d'un gâteau de particules présentant une efficacité d'environ 100%.

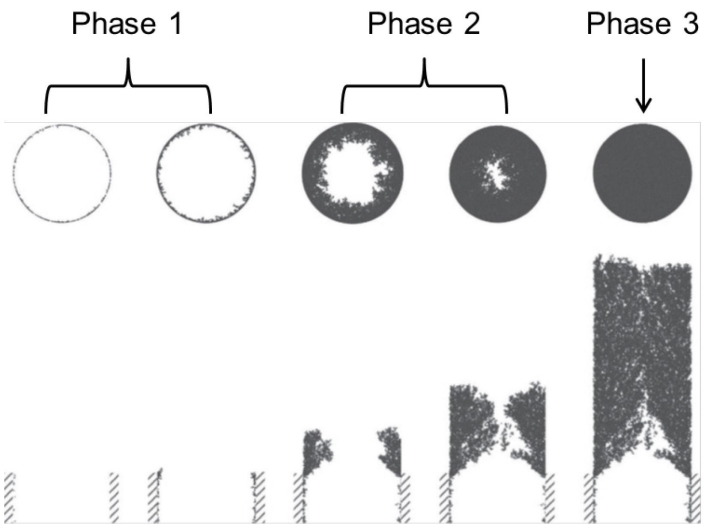


Figure IV-8 Vues du dessus (au-dessus) et en coupe latérale (en-dessous) de l'évolution du colmatage d'un capillaire droit (Elmøe et al., 2009)

L'analyse des données de simulation a permis aux auteurs d'observer une diminution significative de la porosité du dépôt avec l'augmentation du nombre de Peclet (98,5% pour Pe = 0,01 et 86 % pour Pe = 10) ce qui semble qualitativement cohérent avec d'autres résultats de la littérature (Thomas et al., 2014). De plus, il est apparu que cette porosité ne varie pas selon la phase du colmatage dans laquelle se trouve le capillaire. D'un point de vue plus critique, il semble légitime de se demander si la croissance du dépôt durant la seconde phase peut réellement être attribuée à un mécanisme d'interception. En effet, si le terme d'interception fait référence à des particules suivant les lignes de courant passant à une distance du collecteur inférieure à leur rayon, on peut également supposer que la collecte des particules browniennes durant cette phase s'effectue toujours par diffusion mais en étant favorisée par l'irrégularité et la grande surface spécifique du dépôt déjà présent qui augmenteraient la probabilité de collecte. Par ailleurs, ces simulations ne tiennent pas compte d'un éventuel débouchage de pore ou réentrainement sous l'effet de l'augmentation de la perte de charge, phénomène observé dans le cas des hydrosols par Chang et al. (2008).

D'après cet état de l'art, peu d'études expérimentales traitent des dépôts d'aérosols en surface de collecteurs sphériques et aucune d'entre elles ne se focalise sur le cas des nanoparticules. Il apparait dès lors impératif de pallier ce manque afin de développer des modèles de colmatage complets permettant la prédiction de l'évolution de la perte de charge et de l'efficacité. En s'inspirant des diverses méthodes pré-existantes, nous avons choisi d'étudier ce sujet sur la base d'expériences de visualisation de dépôt sur une ligne et une nappe de collecteurs sphériques. Les observations sur la ligne de billes doivent à la fois fournir des informations sur la morphologie des dépôts de nanoparticules et sur l'impact des collecteurs avoisinants. Les expériences sur la nappe de billes doivent quant à elles permettre d'investiguer la cinétique d'obstruction des pores et de relier ces observations à la hausse de perte de charge. Enfin l'utilisation de la simulation numérique étant apparue comme un complément intéressant pour la justification de certains phénomènes, une telle approche combinée a également été mise en œuvre.

IV.2 Matériels et méthodes

IV.2.1 Exposition d'une ligne et d'une nappe de collecteurs sphériques à un flux d'aérosol

Afin de parvenir à réaliser les expériences de visualisation de dépôt énoncées précédemment un banc d'essais permettant l'exposition de collecteurs sphériques à un flux d'aérosols de particules ultrafines a dû être mis au point. Le plus grand challenge dans le développement de ce banc d'essais était de trouver un moyen d'obtenir une ligne et une nappe de collecteurs sphériques présentant de véritables points de contact uniques entre les sphères et n'étant maintenues par aucun support afin de ne pas perturber l'écoulement et donc la forme des dépôts. La solution trouvée réside dans l'utilisation de collecteurs aimantés placés au centre de l'écoulement d'un aérosol. Le montage expérimental (Figure IV-9) consiste principalement en un canal de section carrée de dimensions 60 x 60 x 1000 mm séparable en deux parties entre lesquelles est placée une ligne ou une nappe de billes aimantées. Afin de pouvoir réaliser des observations aux microscopes à intervalles réguliers, un système de cadres amovibles contenant la ligne ou la nappe a été développé.

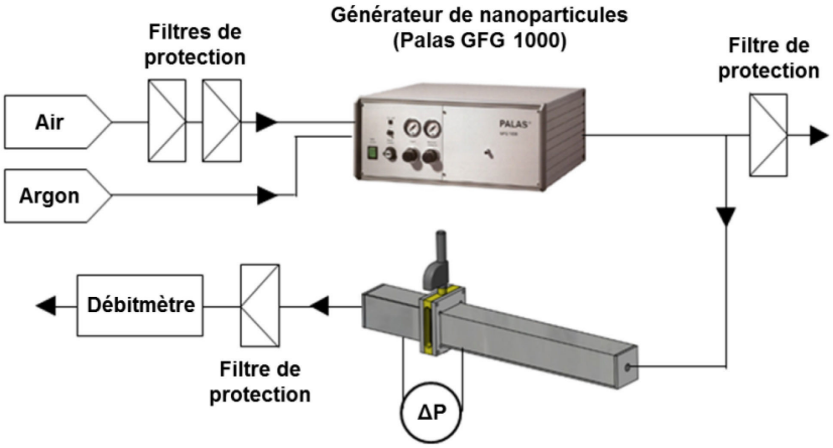


Figure IV-9 Schéma du montage expérimental

- **Cadre adapté à la ligne de billes:**

Dans ce montage inspiré de celui utilisé par Kasper et al. (2010), la ligne est composée de 60 billes de 1 mm de diamètre aimantées axialement au néodyme (NdFeB) et comportant une double enveloppe de nickel (Ni/Cu/Ni). Les aimants au néodyme étant les aimants permanents les plus puissants qui existent, le maintien de la ligne de billes au travers de l'écoulement est assuré sans déformation. A titre d'exemple, une bille de 1 mm peut retenir en suspension une masse d'un matériau ferromagnétique 1500 fois supérieure à la sienne. Afin de tendre à son maximum la ligne de billes d'un bout à l'autre du cadre tout en s'assurant du contact entre les billes, une vis micrométrique a été adaptée sur ce dernier (Figure IV-10). Sur la face du cadre opposée à celle de la vis micrométrique, un roulement à billes a été monté afin d'effectuer des observations sur 360° par rotation du cadre sur un support.

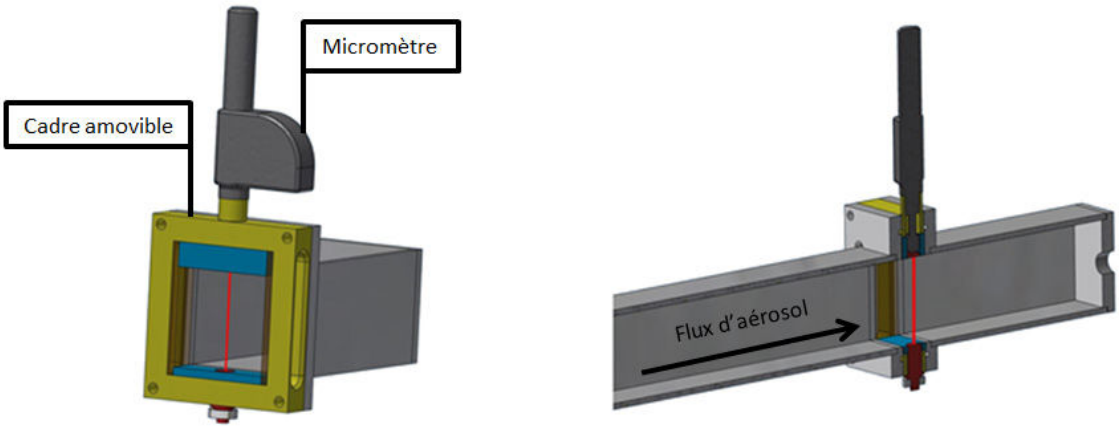


Figure IV-10 Illustration du cadre amovible (jaune) contenant une ligne de collecteurs (rouge) et de son insertion dans le canal.

- **Cadre adapté à la nappe de billes:**

De par la conception de notre montage expérimental, le cadre amovible est la seule partie ayant besoin d'être modifiée afin d'accueillir une nappe de collecteur. Un nouveau modèle a été développé pouvant recevoir une nappe de billes de dimensions 22 x 17 mm et de porosité égale à 47,6 % du fait d'un arrangement carré des collecteurs (Figure IV-11). Le principe de ce cadre est de déposer une nappe dans un logement usiné légèrement en profondeur par rapport à la surface du cadre. Pour faciliter sa mise en place, il a été choisi de ne pas utiliser l'aimantation de la nappe pour la solidariser avec le cadre qui a par conséquent été réalisé en un matériau diamagnétique (Aluminium). Ainsi comme le montre la Figure IV-11, la nappe est rigidement liée au cadre par un système de bride serrée grâce à des vis.

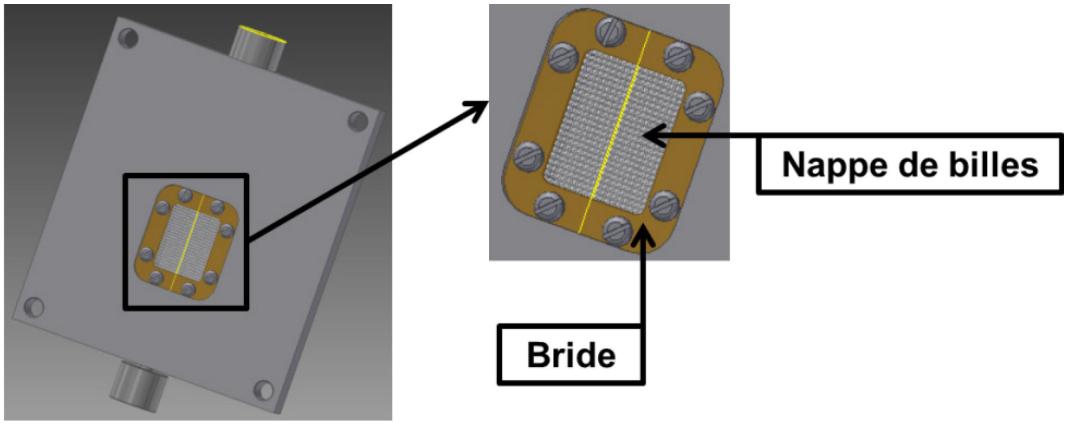


Figure IV-11 Illustration du cadre amovible adapté à une nappe de collecteurs et du système de bride

IV.2.2 Conditions opératoires

Trois aérosols différents de nanoparticules ont été utilisés dans cette étude, i.e. carbone (graphite), titane et fer. Ces aérosols ont été générés par évaporation/condensation avec un générateur Palas® GFG-1000 dont le principe de fonctionnement a été décrit dans le chapitre 2. D'après une étude récente de Charvet et al. (2014), le diamètre des particules primaires composant les agglomérats de ces aérosols est d'environ 9, 3 et 2 nm pour le carbone, le titane et le fer, respectivement.

Les distributions granulométriques en nombre mesurées au moyen d'un SMPS (TSI, SMPS 3936) (Figure IV-12) montrent un diamètre médian équivalent en mobilité électrique de 68, 38 et 32 nm pour le carbone, le titane et le fer respectivement avec un écart-type géométrique de 1,55 indépendamment du matériau utilisé. Ces différents aérosols n'ont pas été systématiquement utilisés lors de cette étude. Ainsi pour les expériences sur la ligne de billes, seuls les dépôts de particules de carbone ont été observés car il s'agit, parmi les trois cités ci-dessus, du seul matériau diamagnétique (non-impacté par les champs magnétiques). Cette propriété est importante car le but de cette étude est d'observer la structure des dépôts dans un cadre général où les interactions électromagnétiques entre les collecteurs et les particules sont négligeables. En plus d'utiliser cet aérosol de carbone, nous avons, dans le cas de la nappe de billes, profité de la nature des collecteurs pour visualiser l'impact du champ magnétique sur les dépôts de particules ayant des susceptibilités positives mais de valeur très différentes, i.e., $2x10^{-4}$ pour le titane et $2x10^{5}$ pour le fer. Ce paramètre indique que les particules de ces deux matériaux sont attirées par les collecteurs mais avec une force d'attraction maximale dans le cas du fer.

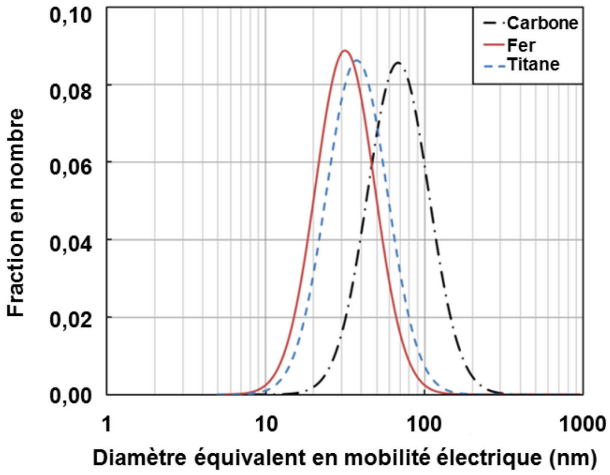


Figure IV-12 Distributions granulométriques des trois aérosols utilisés

Les dépôts sur la ligne de billes ont été réalisés à une vitesse superficielle de 20 cm/s. Les colmatages de la nappe de billes ont quant à eux été effectués à 5 cm/s ou 20 cm/s. L'utilisation de deux vitesses doit permettre d'observer les différences de cinétique d'obstruction des pores et d'augmentation de la perte de charge liées à la variation de porosité. En effet à diamètre de particules constant, cette dernière est corrélée à la vitesse de filtration (Thomas et al., 2014).

IV.2.3 Observation des dépôts

Les observations des dépôts ont été réalisées grâce à un jeu de microscopes digitaux (Dino-Lite®) présentant des grossissements de x470, x250 et x25 et une résolution de 5 mégapixels. Les dimensions extérieures du cadre étant les mêmes dans ces deux configurations, un seul dispositif d'observation a été utilisé (Figure IV-13). Il comprend une potence de précision afin d'effectuer la mise au point la plus précise possible des microscopes. Une platine bidimensionnelle munie de compteurs micrométriques a également été ajoutée afin de permettre un positionnement très précis de la nappe ou de la ligne de billes sous le microscope.

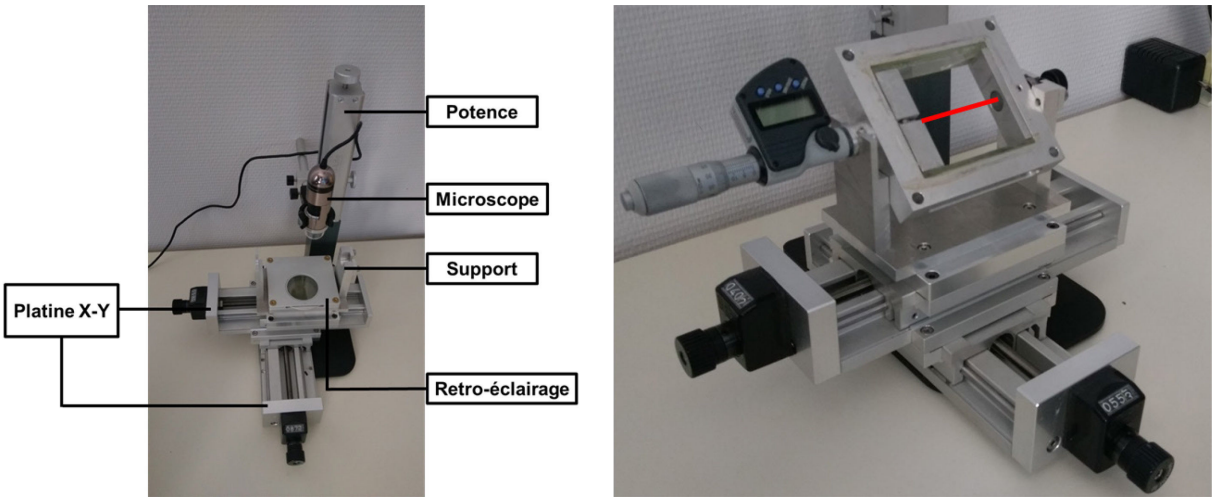


Figure IV-13 Photographies du dispositif d'observation complet (Gauche) et du cadre rotatif sur son support (Droite)

Enfin, un rétro-éclairage réglable a été monté sur le dispositif pour obtenir des photographies avec un fond uniforme afin de faciliter leur traitement. Un marbre a également été placé sous le dispositif de la Figure IV-13 pour pallier les vibrations liées aux déplacements du personnel qui impactaient les images à fort grossissement.

- **Protocole d'observation des dépôts sur une ligne de billes:**

Pour l'observation de dépôts en surface d'une ligne de collecteurs sphériques, des grossissements de x250 et x470 ont été utilisés. Ce couplage permet d'obtenir des images de la totalité d'une bille (x250) et des zooms sur les trois quarts d'un hémisphère (x470). Puisque les premières observations ont montré un dépôt identique d'une bille à une autre, nous avons décidé de ne prendre des clichés que d'un seul collecteur (toujours le même) pour chaque intervalle de temps d'exposition afin de limiter le nombre d'image à analyser. Observer constamment la même bille à fort grossissement est grandement facilité voire rendu possible par l'utilisation des compteurs micrométriques de la platine.

- **Protocole d'observation des dépôts sur une nappe de billes:**

L'observation des dépôts sur la nappe est plus complexe que celle de la ligne de collecteurs. En effet, il est apparu lors d'expériences préliminaires que, malgré un colmatage homogène de la nappe, certains évènements ponctuels pouvaient survenir et créer des singularités.

Ainsi, il est possible ponctuellement qu'un amas de très grande taille formé dans les différentes canalisations en amont de la nappe se détache et vienne bouleverser la croissance du dépôt dans certains pores ou encore que d'autres se débouchent sous l'effet de l'augmentation de la perte de charge. Afin de s'affranchir de ces évènements, nous avons décidé d'établir une cartographie des zones d'observation de la nappe pour les deux grossissements utilisés, i.e., x25 et x470 (Figure IV-14). Le grossissement de x25 permet, comme le montre la Figure IV-14, d'observer la quasi-totalité de la zone de la nappe exposée à l'écoulement (cadre noir), et ainsi d'avoir un aperçu de l'homogénéité du colmatage. A fort grossissement, 9 zones d'observation couvrant exactement un pore ont été définies (cadres bleus). Les compteurs micrométriques de la platine X-Y ont permis de s'assurer que les 9 mêmes pores étaient observés entre chaque période d'exposition au flux d'aérosol.

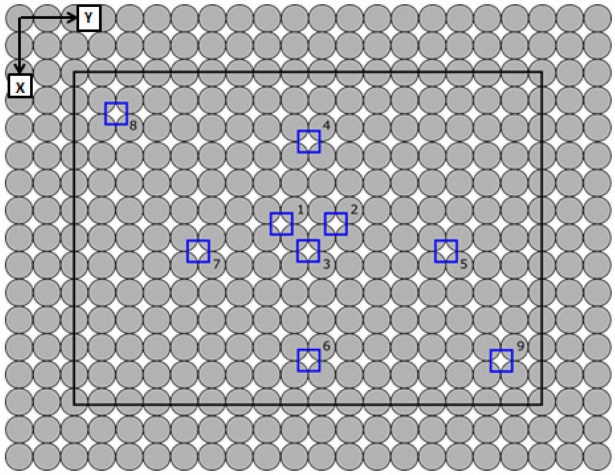


Figure IV-14 Localisation des différentes zones d'observation sur la nappe de billes (Noir = x25 ; Bleu = x470)

IV.3 Résultats

IV.3.1 Analyse des dépôts de nanoparticules sur une ligne de billes

Les dépôts des nanoparticules sur les collecteurs ont été suivis au cours du temps en stoppant périodiquement la génération de l'aérosol pour permettre le placement du cadre sur son support d'observation. Après chaque observation, la génération est reprise sans nettoyage de la ligne de billes. L'intervalle de temps entre deux prises de clichés successives a été fixé au départ de l'expérience sur la base des tests de validation du montage. En effet, ces essais préliminaires ont permis d'évaluer qualitativement la cinétique de croissance du dépôt sur la ligne de billes. Du fait du faible espace occupé par les collecteurs en comparaison des dimensions du canal d'écoulement, cette cinétique est extrêmement lente. En effet, il est nécessaire d'attendre au minimum 4 heures pour qu'un dépôt soit visible (Figure IV-15 – Gauche) et 8 heures (Figure IV-15 – Droite) pour pouvoir effectuer une mise au point satisfaisante du microscope x470.

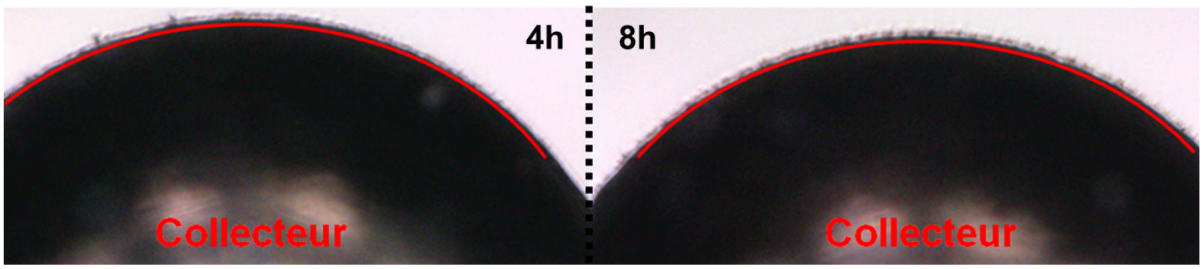


Figure IV-15 Photographies des dépôts de nanoparticules de carbone à 4 (Gauche) et 8 heures (Droite)

De plus d'après ces deux clichés, on remarque que la différence de dépôt entre 4 et 8 heures est minime. Il a par conséquent été décidé au début de l'expérience de ne pas réaliser d'observations à moins de 8 heures d'intervalle. Cette durée a été amenée à changer durant les expériences pour vérifier si une modification de la cinétique de dépôt devait être prise en compte au fur et à mesure de sa croissance.

En termes de résultats, les observations réalisées à un grossissement de x250 (Figure IV-16 – A) ont mis en évidence un dépôt très fin de forme elliptique dont l'épaisseur est nulle au niveau des points de contact entre deux billes. Le système de cadre rotatif a également permis de vérifier que cette forme elliptique du dépôt était reproduite sur 360° autour de la surface des collecteurs.

Ces observations sont cohérentes avec les résultats de l'étude de Kanaoka et al. (1986) qui prédisait un dépôt homogène tout autour d'une fibre cylindrique dans le cas d'une diffusion brownienne prédominante. La forme du dépôt spécifique à cette étude en comparaison de celles observées par Kanoaka et al. ou Kasper et al. est liée à la prise en compte des points de contact et probablement pas au type de collecteurs, i.e. sphérique ou cylindrique.

Du fait de l'uniformité de la forme du dépôt autour des collecteurs, l'évolution de son épaisseur en fonction du temps a pu être mesurée avec une plus grande précision sur un seul hémisphère en utilisant un plus fort grossissement (X470). Ces mesures ont été réalisées grâce à un programme de traitement d'image développé sous Matlab® au sein de l'équipe. Le traitement des images se fait en plusieurs étapes. Dans un premier temps, les images en couleurs sont converties en niveaux de gris (Figure IV-16 – B). La conversion en niveau de gris permet d'avoir des variations de teinte ne s'étalant que sur une seule échelle allant de 1 (noir) à 255 (blanc). La suite du traitement d'image consiste en deux seuillages successifs permettant de différencier dans un premier temps le fluide (air) du solide (collecteur + dépôt) et dans un second temps le dépôt du collecteur. Ces seuillages sont réalisés en déterminant à l'aide d'un pointeur les valeurs maximales en niveau de gris de la teinte représentative du collecteur et du dépôt. L'image est ensuite binarisée selon ces valeurs limites (Figure IV-16 – C) : les pixels dont la valeur de teinte en niveau de gris est compris entre ces deux seuils apparaissent ainsi en blanc (dépôt) et dans le cas contraire en noir (collecteur+fluide). La dernière étape consiste en la détection des contours du dépôt et du collecteur. Pour ce faire, le programme effectue un balayage de l'image de haut en bas en gardant en mémoire les coordonnées du premier et du dernier pixel blanc rencontré. En répétant ce balayage sur toute la largeur de l'image, le programme permet d'obtenir le profil du dépôt en fonction de la position à la surface du collecteur. Le dépôt prenant une forme elliptique, le programme fournit finalement l'équation de l'ellipse et de la sphère s'ajustant le mieux au contour du dépôt et du collecteur, respectivement (Figure IV-16 – D).

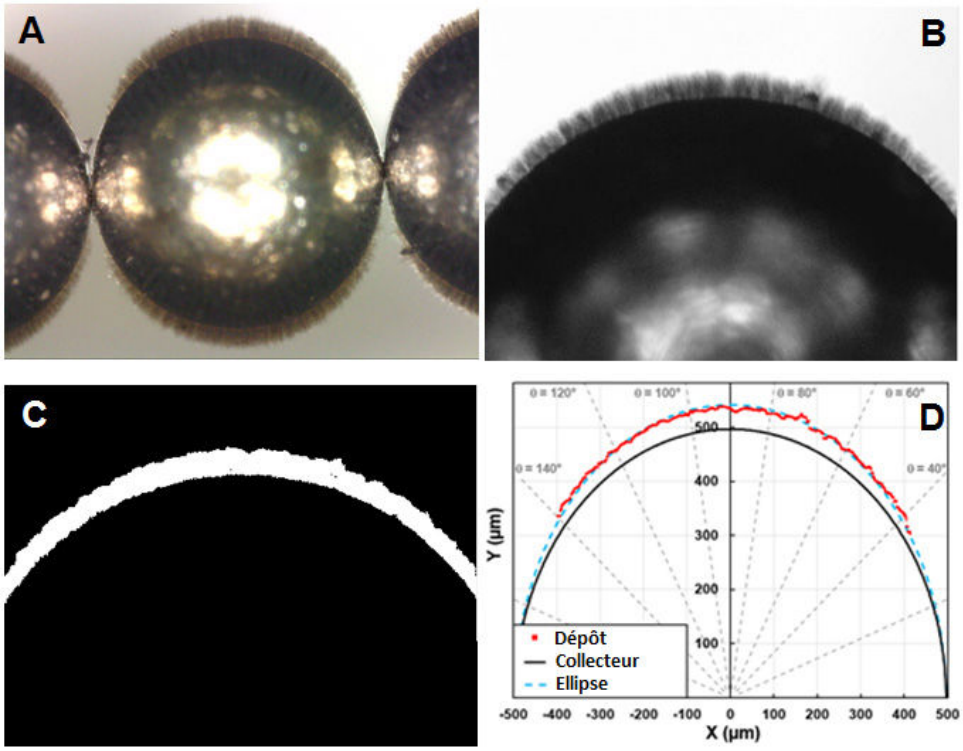


Figure IV-16 (A) Image d'un collecteur de 1 mm de diamètre après un temps d'exposition de 3420 min (x250); (B) Image en niveau de gris d'un collecteur après un temps d'exposition de 3420 min (x470); (C) Image binarisée d'un collecteur après un temps d'exposition de 3420 min (x470); (D) Représentation d'un profil de dépôt en fonction de la position en surface d'un collecteur après un temps d'exposition de 3420 min

En analysant toutes les images de la même manière, l'évolution de l'épaisseur et de la forme du dépôt en fonction du temps d'exposition a pu être obtenue (Figure IV-17). Les résultats présentés sur la figure ci-dessous montrent ainsi que le dépôt croît linéairement en tout point de la surface d'un collecteur. Le fait que le taux de croissance du dépôt soit constant montre une augmentation de l'efficacité de collecte de la ligne de billes au cours du temps. En effet, puisque la surface externe du collecteur augmente avec le volume de particules déposé, il est nécessaire d'en collecter un nombre de plus en plus important pour conserver une même augmentation d'épaisseur en un intervalle de temps fixe. La Figure IV-17 met également en évidence que la forme elliptique du dépôt est conservée au cours du temps avec une épaisseur restant nulle au niveau des points de contact. Ce phénomène dont on peut supposer qu'il est dû à un plus faible débit massique de particules lié à l'augmentation de la résistance à l'écoulement entre deux billes a été étudié plus en détail lors des essais sur la nappe de billes.

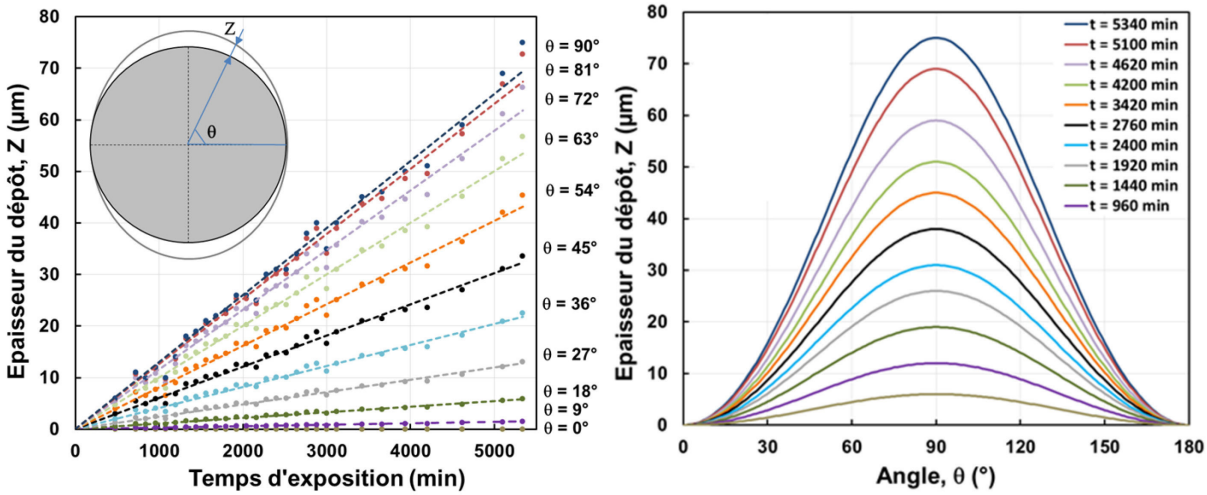


Figure IV-17 Epaisseur de dépôt sur un collecteur en fonction de l'angle (Gauche) et du temps d'exposition (Droite)

IV.3.2 Analyse des dépôts de nanoparticules sur une nappe de billes

Dans le cas de la nappe de billes, deux variantes du protocole expérimental ont été utilisées. Alors que l'une d'elles est identique au cas de la ligne de bille (Protocole A : redémarrage de l'expérience après chaque visualisation au précédent degré de colmatage), la seconde diffère par le fait que la nappe est nettoyée systématiquement d'une prise de clichés à une autre (Protocole B). Dans ce cas, le colmatage de la nappe est repris depuis le début en augmentant successivement le temps d'exposition afin d'obtenir l'évolution temporelle de l'obstruction des pores et de la perte de charge. Ce deuxième protocole a été utilisé car il a pu être remarqué en utilisant le premier (expériences n°=1 et n°=2, cf. Tableau IV-1), que la perte de charge pouvait être modifiée entre l'arrêt et la reprise de l'expérience consécutive aux visualisations. Ces différences de perte de charge peuvent s'expliquer par les diverses manipulations que subit la nappe de billes (démontage/réassemblage du cadre et du canal) ainsi que par des à-coups de pression liés à l'ouverture/fermeture de la vanne d'isolement du canal. La Figure IV-18 représentant la perte de charge de la nappe en fonction de la durée de colmatage montre la robustesse de ce deuxième protocole. En effet, il a pu être mis en évidence une évolution de la perte de charge strictement identique pour chacun des essais caractérisés par différents temps d'exposition.

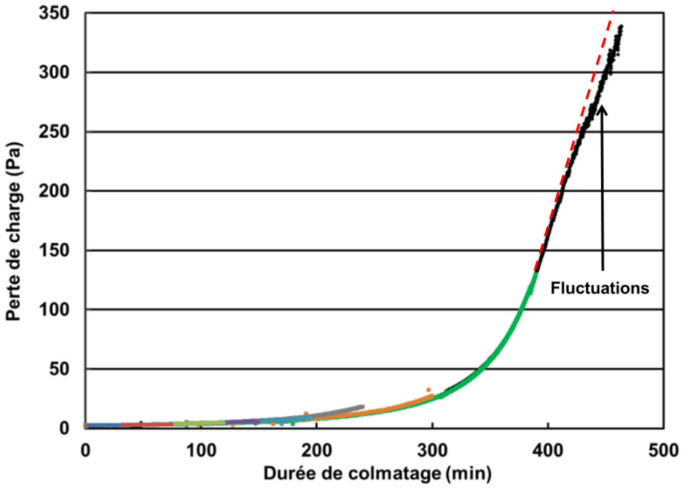


Figure IV-18 Evolution de la perte de charge de la nappe de billes en fonction de la masse surfacique générée pour les différents cycles de colmatage

Ces expériences ayant été réalisées pour diverses natures d'aérosol et vitesses superficielles, les conditions opératoires ont été résumées dans le tableau suivant :

Tableau IV-1 Conditions opératoires et protocoles de chaque expérience

Expérience	#1	#2	#3	#4	#5
Vitesse superficielle (cm/s)	20	5	20	20	20
Concentration massique (mg/m^3)	1,83	1,83	10,97	2,39	3,62
Matériau des nanoparticules	Carbone	Carbone	Carbone	Fer	Titane
Protocole	A			B	
Diamètre équivalent en mobilité électrique médian (nm)	68	68	68	32	38
Nombre de Reynolds	4,2	1	4,2	4,2	4,2
Nombre de Péclet[1]	1,5 x 10^5 (10,2)	3,7 x 10^4 (2,56)	1,5 x 10^5 (10,2)	3,7 x 10^4 (1,184)	5,1 x 10^4 (1,938)
Nombre de Stokes	5 x 10^{-5}	1,2 x 10^{-5}	5 x 10^{-5}	7,3 x 10^{-5}	5,1 x 10^{-5}
Paramètre d'interception		6,8 x 10^{-5}		3,2 x 10^{-5}	3,8 x 10^{-5}

Les faibles valeurs de nombre de Reynolds (<10), de nombre de Péclet (<10), de nombre de Stokes (<0,1) et de paramètres d'interception (<0,001) permettent de s'assurer que les colmatages ne se font que sous l'effet du mécanisme de diffusion brownienne.

IV.3.2.1 Morphologie des dépôts de nanoparticules obstruant un pore

D'un point de vue qualitatif, les images réalisées à fort grossissement (x 470) ont montré que le colmatage était quasi-simultané et identique dans les neuf zones d'observation décrites précédemment et donc potentiellement homogène sur toute la surface de la nappe. La Figure IV-19 montre à titre d'exemple l'évolution du colmatage des neuf zones dans le cas de l'expérience 1. Les observations réalisées sur ces neuf zones ont également révélé, qu'à très fort niveau de colmatage, il pouvait se produire ponctuellement un phénomène de débouchage des pores sous l'effet de

[1] Les nombres de Péclet entre parenthèses sont calculés avec pour dimension caractéristique le diamètre des nanoparticules au lieu de celui des collecteurs à des fins de comparaison avec le diagramme de Kanaoka et al. (Figure IV-6)

l'augmentation de la perte de charge. Ces évènements étant très localisés et le dépôt des pores colmatés opposant une forte résistance à l'écoulement, les pores débouchés se recolmatent dans un temps relativement court du fait de l'augmentation du débit massique de particules les traversant. Ce phénomène peut par ailleurs expliquer certaines fluctuations de perte de charge se produisant pour des degrés de colmatage importants et dont l'apparition est marquée par une légère inflexion de l'évolution temporelle de la perte de charge (tirets rouge sur la Figure IV-18). Ces résultats semblent ainsi confirmer les observations et les hypothèses avancées au chapitre 2 concernant les causes et le déroulement de la phase C du colmatage de lits granulaires par des PUF.

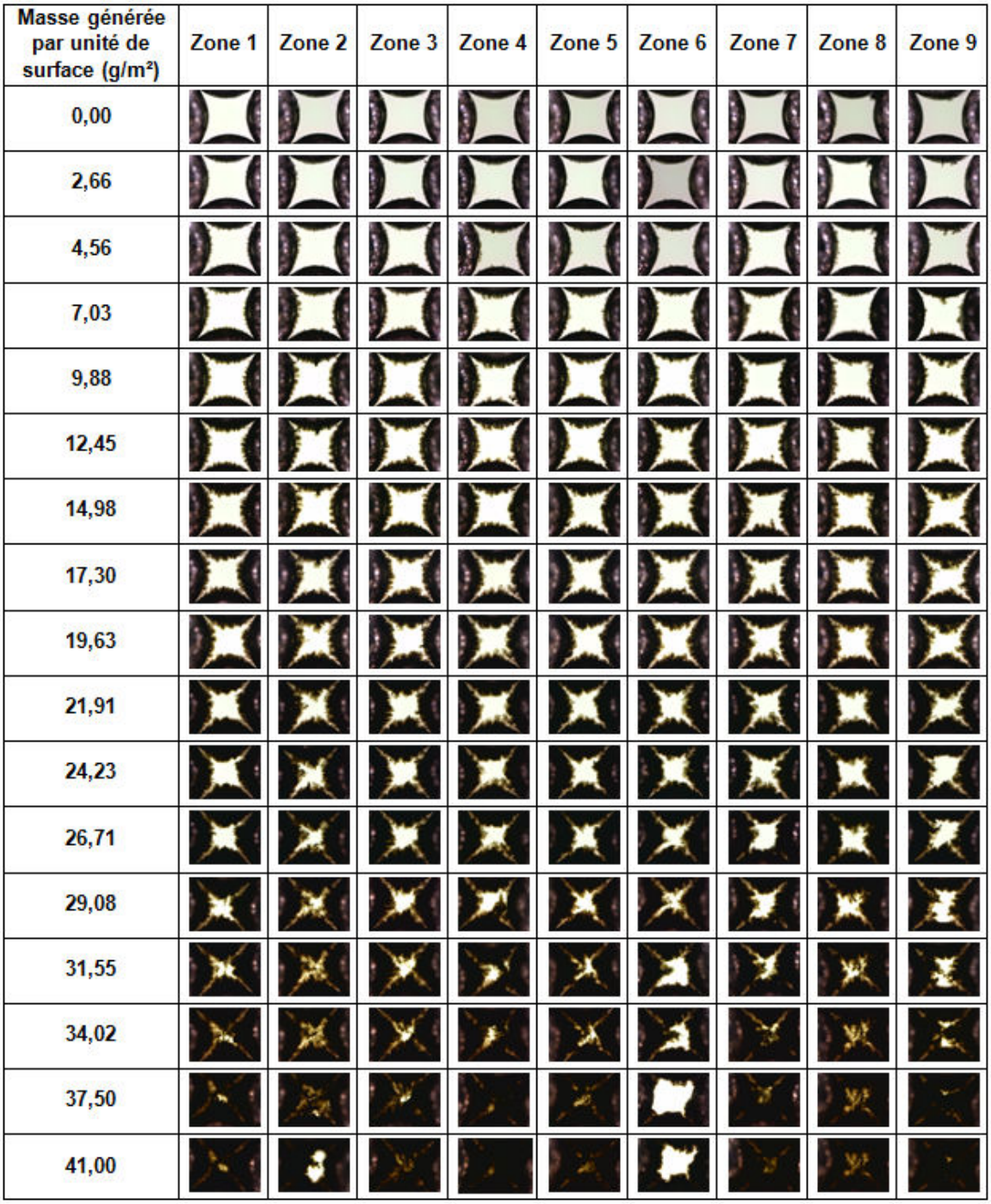


Figure IV-19 Visualisation des dépôts de particules dans les neuf zones d'observations reparties sur toute la surface de la nappe (X470, Exp. n°=1)

Dans le cas des expériences réalisées avec des particules de carbone, ces visualisations ont également mis en évidence un dépôt quasi-ellipsoïdal entre les points de contact délimitant les quatre côtés d'un même pore. Ces observations sont en accord avec celles effectuées sur la ligne de billes, à savoir qu'une plus grande résistance à l'écoulement au niveau des points de contact entre les sphères provoque dans ces zones une réduction du débit massique de particules et par conséquent un très faible dépôt. Pour confirmer cette hypothèse, des simulations numériques d'écoulement à travers un pore de la nappe ont été réalisées avec le code de calcul ANSYS Fluent ® pour les deux vitesses superficielles utilisées (5 et 20 cm/s). Dans le cas de la vitesse la plus importante, les résultats de simulations obtenus avec un modèle laminaire et de turbulence k-ε se sont avérés identiques, ce qui est en accord avec les nombres de Reynolds présentés dans le Tableau IV-1. Ces simulations montrent que les vitesses locales sont effectivement infimes dans la zone des points de contact (Figure IV-20). Ainsi malgré une plus haute efficacité de collecte par diffusion à basse vitesse, le débit massique de particules est tellement faible que le dépôt aux points de contact reste très inférieur à celui présent sur le reste de la surface du collecteur.

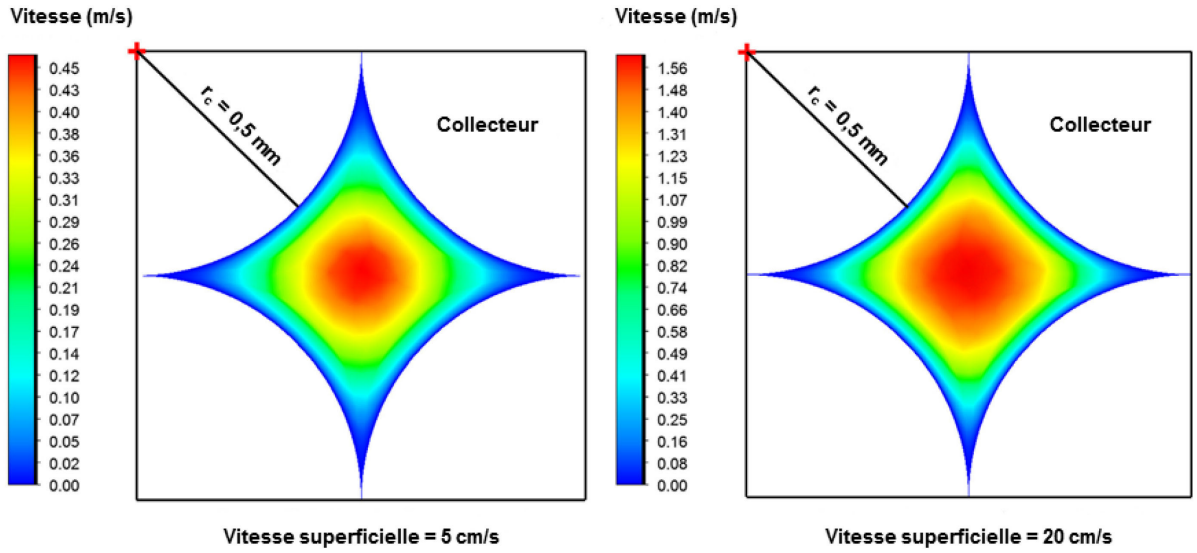


Figure IV-20 Champ de vitesses locales dans un pore à deux vitesses superficielles différentes (5 cm/s et 20 cm/s)

Concernant les expériences 4 et 5 utilisant des aérosols ferro- et para-magnétiques, le colmatage de la nappe a pu aussi être considéré comme homogène. Cependant, la forme du dépôt à l'intérieur des pores change significativement sous l'effet du magnétisme. En effet, la Figure IV-21 – B montre une surreprésentation du dépôt autour d'une diagonale traversant le pore et par conséquent que les forces magnétiques sur les particules de fer contrecarrent la faiblesse du débit au niveau des points de contact. L'image B sur la Figure IV-21 a été prise en surexposition lumineuse donnant l'impression qu'aucun dépôt ne s'effectue sur l'autre diagonale alors que cela n'est pas le cas en regard de l'image prise au pas de temps précédent dans des conditions d'exposition moins forte (Figure IV-21 – A). Cette comparaison à différentes luminosités permet de mieux se rendre compte de la différence de densité du dépôt et donc de la plus grande quantité de particules retenue dans la diagonale nord-ouest / sud-est.

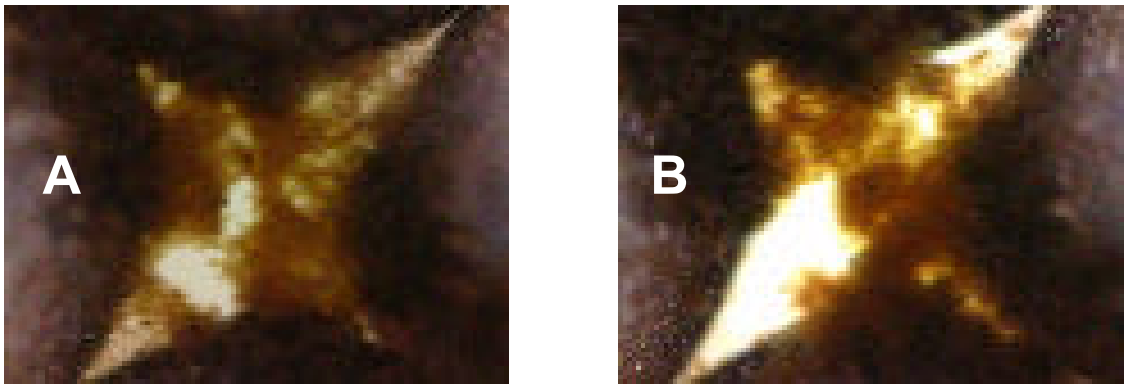


Figure IV-21 Dépôt de nanoparticules de fer dans un pore formé par des billes magnétiques en arrangement carré pour une masse générée de 23,78 g/m^2 (A) et de 29,73 g/m^2 (B) (x470, Exp. n°=4,)

Cette répartition particulière du dépôt est en partie liée à la localisation de pôles magnétiques des collecteurs aimantés (Figure IV-22). En effet, dans un même pore, les deux couples de pôles nord-sud formés par deux collecteurs avoisinants sont situés aux deux extrémités d'une même diagonale traversant le pore.

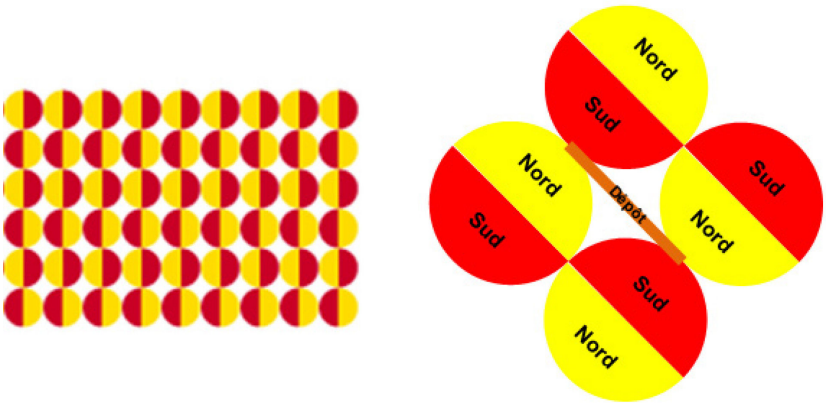


Figure IV-22 Représentations schématiques de la position des pôles de billes aimantées en arrangement carré

De plus, sous l'effet du champ magnétique, les particules de fer deviennent chacune des dipôles magnétiques fortement attirés par les pôles nord et sud des collecteurs au voisinage desquels le champ magnétique est le plus fort (Cheng et al., 2014). La combinaison de ces deux facteurs permet ainsi d'expliquer la différence de morphologie avec les dépôts de carbone sur ces mêmes collecteurs aimantés.

Une fois que la croissance du dépôt a permis de relier les deux zones de jonction des pôles nord/sud d'un même pore (Figure IV-21 – B), une majorité du débit passe alors à travers les zones libres ou moins denses en dépôt. Ceci permet ainsi d'expliquer l'homogénéisation du dépôt en fin d'expérience dans un pore donné. Dans le cas des particules de titane, ce comportement est bien moins marqué du fait d'une susceptibilité magnétique 1 milliard de fois plus faible que celle du fer.

IV.3.2.2 Quantification du degré de colmatage

Afin de pouvoir relier les observations visuelles à des données de perte de charge ou de temps, il est impératif de définir une grandeur quantifiant le colmatage des nappes de collecteurs et qui soit déterminable à partir des clichés. La variation de perte de charge étant directement liée à l'augmentation de la résistance à l'écoulement, il a été décidé d'utiliser comme critère le ratio de fermeture d'un pore défini, en vue du dessus de la nappe, comme le rapport entre la surface occupée par le dépôt à un instant donné dans un pore et sa surface initialement libre à l'écoulement. Afin de mesurer la surface libre d'un pore à chaque intervalle de temps, un programme de traitement d'image a été développé sous Matlab®. Pour un pore donné, les clichés en couleur (Figure IV-23 – A) sont convertis en niveau de gris (Figure IV-23 – B) puis binarisés selon une valeur seuil définie sur l'échelle des teintes de niveau de gris (Figure IV-23 – C) pour différencier la surface libre à l'écoulement de celle occupée par le dépôt et les collecteurs. L'échelle des teintes de l'image binarisée ne comprenant que 2 valeurs, i.e. 0 (noir) ou 1 (blanc), le programme peut alors détecter le nombre de pixels blancs correspondant à la zone non-obstruée et calculer sa surface en m^2. En répétant ce traitement à chaque pas de temps y compris à l'état initial (Figure IV-23 – D), il est alors possible de calculer le ratio de fermeture décrit précédemment, γ, sur chaque zone d'observation (équation 43).

$$\gamma = 1 - \frac{s_{l(0)}}{s_{l(t)}} \qquad 43$$

Avec $s_{l(0)}$ la surface libre initiale du pore et $s_{l(t)}$ sa surface libre après un temps de colmatage, t.

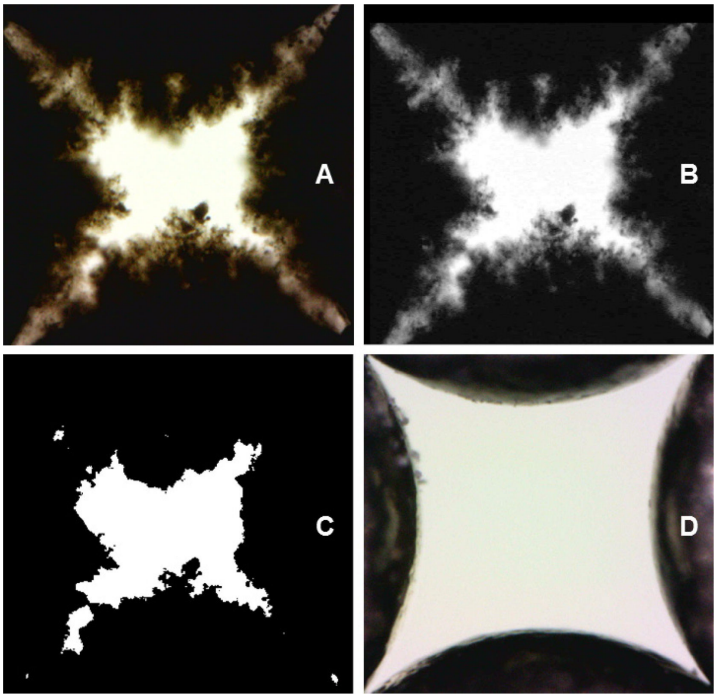


Figure IV-23 (A) Image couleur d'un pore en cours de colmatage; (B) Image en niveau de gris d'un pore en cours de colmatage; (C) Image binarisée d'un pore en cours de colmatage (x470, Exp. n°=3, 27,34 g/m² générés); (D) Image couleur d'un pore à l'état initial.

Le dépôt ayant été observé comme homogène pendant le colmatage sur toute la surface de la nappe, un ratio de fermeture moyen des neuf zones d'observation, $\bar{\gamma}$, a été utilisé pour quantifier le degré de colmatage. L'évolution de ce ratio en fonction de la masse surfacique générée est représentée pour les différentes expériences réalisées sur la Figure IV-24.

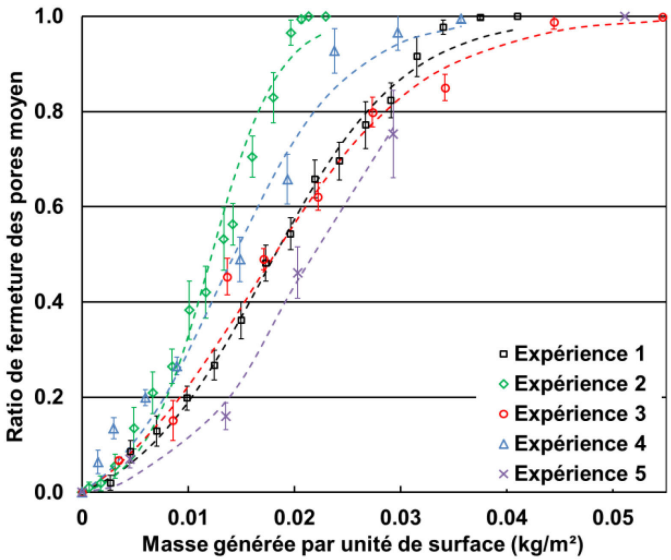


Figure IV-24 Degré moyen de fermeture des pores en fonction de la masse surfacique générée pour les expériences 1 à 5

Les résultats des deux expériences réalisées avec des particules de carbone à une même vitesse superficielle (expérience n°=1 et n°=3) étant très proches, cela montre que les mesures sont reproductibles malgré l'utilisation de deux protocoles différents (sans ou avec nettoyage de la nappe entre chaque degré de colmatage observé). De plus pour un même aérosol (carbone), l'obstruction des pores apparait plus rapide à faible vitesse, i.e., dans le cas de l'expérience n°=2 réalisée à 5 cm/s au lieu de 20 cm/s. Cette différence de cinétique de colmatage peut s'expliquer par la conjugaison de deux phénomènes directement liés à la baisse de vitesse, à savoir l'augmentation de l'efficacité de collecte par diffusion brownienne ainsi que de la porosité du dépôt et donc du volume occupé à masse collectée identique. Alors que le premier point est difficilement quantifiable expérimentalement du fait de la très faible épaisseur (1 mm) et donc efficacité de la nappe, l'augmentation de la porosité peut être quant à elle constatée visuellement grâce à la Figure IV-25 présentant les morphologies de dépôts pour un même ratio de fermeture dans le cas des expériences n°=1, 2 et 3. D'après cette illustration, le dépôt apparait moins compact dans le cas de l'expérience n°=2, ce qui est en accord avec les études montrant une décroissance de la porosité de gâteaux de nanoparticules avec l'augmentation de la vitesse de filtration (Thomas et al., 2014).

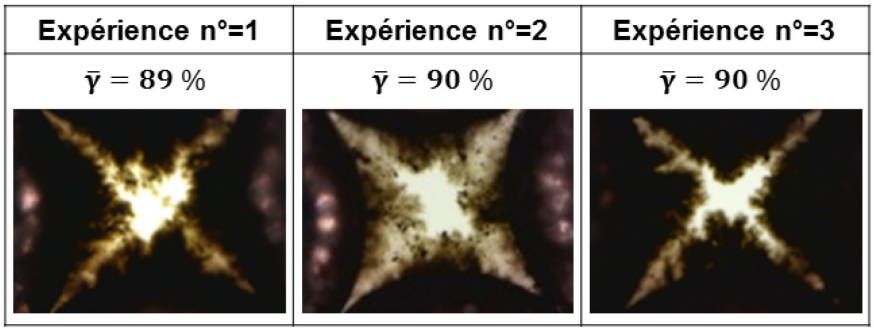


Figure IV-25 Morphologie des dépôts pour un état de colmatage identique ($\bar{\gamma}$ = 90%) entre les expériences réalisées à 20 cm/s (n° 1 et 3) et 5 cm/s (n°=2) avec un aérosol de carbone

Ce raisonnement est également en accord avec les visualisations réalisées à faible grossissement (x25) permettant d'observer la nappe dans sa totalité et montrant un dépôt visuellement plus compact pour une vitesse superficielle de 20 cm/s (Figure IV-26).

La figure ci-dessous met également en évidence que l'effet conjoint de la diminution de la porosité du dépôt (i.e. augmentation de sa résistance à l'écoulement) et d'une vitesse superficielle plus importante conduit à un phénomène de débouchage des pores plus fréquent (Figure IV-26 – Gauche).

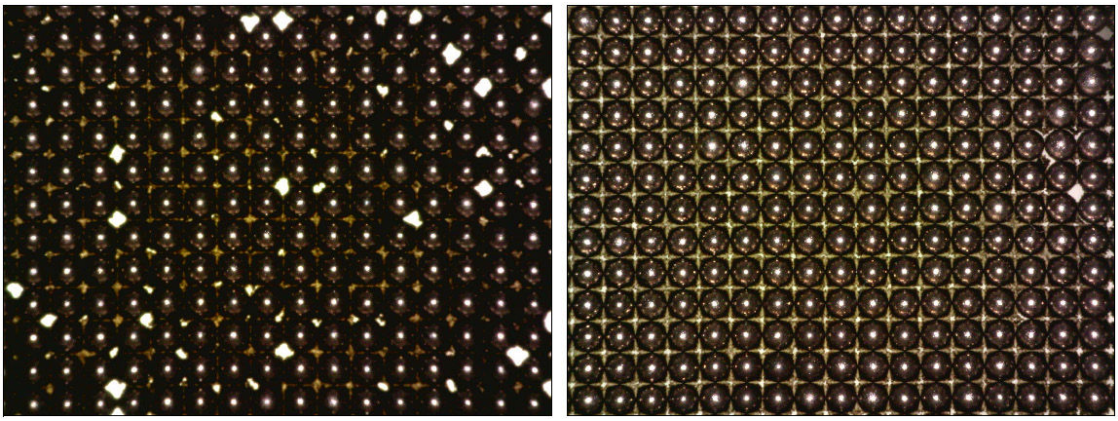


Figure IV-26 Dépôt de nanoparticules de carbone sur la quasi-totalité de la nappe entièrement colmaté (x25) pour les expériences n°=1 (Gauche, 20 cm/s) et n°=2 (Droite, 5 cm/s)

Concernant l'allure des courbes de ratio de fermeture présentées en Figure IV-24, il a pu être constaté, dans le cas où le magnétisme ne joue aucun rôle (Expériences n°=1, 2 et 3), que l'évolution du degré de colmatage suit à chaque fois une allure quasi-sigmoïdale. Dans le cas des aérosols de fer et de titane, il est intéressant de remarquer que l'introduction d'une interaction magnétique collecteurs / particules produit un changement d'allure aux premiers instants du colmatage. En effet, le ratio de fermeture subit une croissance quasi-instantanée avant de rejoindre un motif d'évolution sigmoïdale. Afin de comprendre ce qui peut causer ces différences d'évolution et pour plus de clarté, la courbe de l'expérience n°= 4 a été représentée seule sur la Figure IV-27 simultanément aux visuels de l'obstruction des pores correspondant à cette phase de croissance initiale du ratio de fermeture (Figure IV-28 / Tirets bleus sur la Figure IV-27).

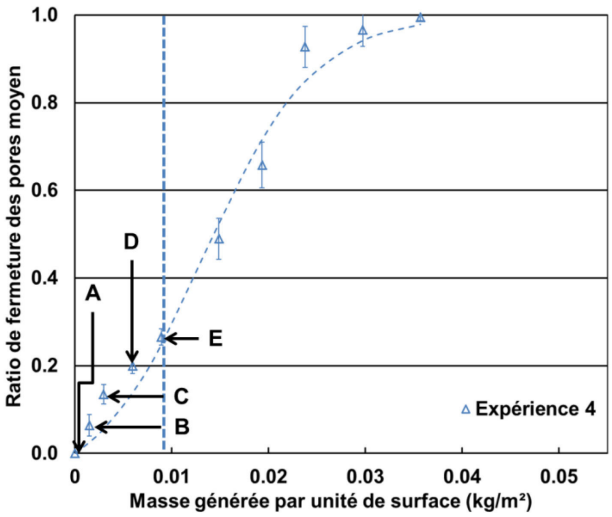


Figure IV-27 Evolution du ratio de fermeture moyen des pores en fonction de la masse surfacique générée d'un aérosol de fer (Exp. n°= 4)

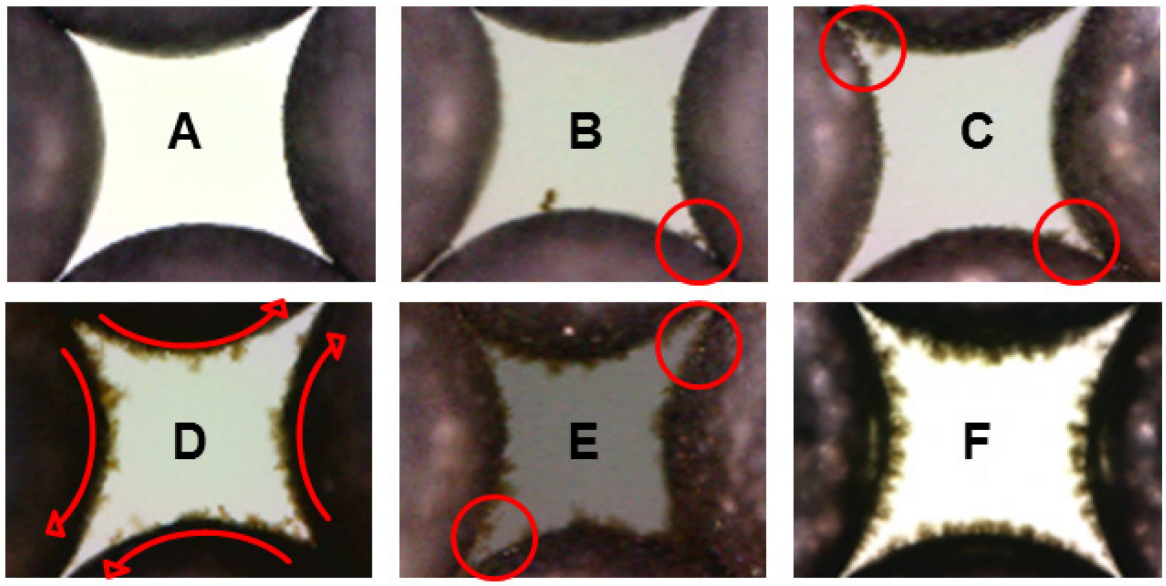


Figure IV-28 Visuels de l'obstruction d'un pore par des nanoparticules de fer (A –E) et de carbone (F) pendant la phase initiale de colmatage

Cette mise en parallèle entre la courbe de ratio de fermeture et les visuels permet de formuler l'hypothèse suivante. Du fait de l'attraction magnétique, une majorité des premières particules déposées est préférentiellement localisée au niveau des jonctions de pôles nord/sud des collecteurs (Figure IV-28 – B, Cercle rouge). Dès lors, ces premières particules collectées agissent comme un «germe de dépôt» augmentant l'efficacité de ces deux zones attirant déjà initialement un nombre plus important de particules. Ceci a donc pour conséquence d'accélérer la fermeture des pores par rapport au cas où le magnétisme n'est pas contributif (i.e. pour un aérosol de carbone). Une fois les zones de jonctions des pôles nord-sud significativement occupées (Figure IV-28 – C, Cercles rouges), le dépôt s'étend progressivement, à partir de ces dernières, au reste de la surface des collecteurs (Figure IV-28 – D, Flèches rouges). Cette variation de lieu de dépôt est due au fait que les nanoparticules de fer en s'oxydant (oxydation remarquable à la couleur orangée des particules sur la Figure IV-28) perdent peu à peu leur caractère ferromagnétique (Prado et al., 2015). En effet, ces dernières forment ainsi une couche qui, au-delà d'une certaine épaisseur, atténue assez fortement l'action du champ magnétique pour qu'une zone plus éloignée des pôles devienne plus attractive en comparaison d'une autre plus proche mais présentant en revanche un dépôt significatif. Ce changement est particulièrement visible sur le visuel D où la quantité de dépôt diminue avec l'éloignement aux jonctions des pôles magnétiques. Cette étape correspondant à une inflexion de la courbe de ratio de fermeture marque le retour à une évolution sigmoïdale pleinement établie pour un niveau de colmatage représenté par le visuel E où le dépôt atteint les points de contacts opposés aux pôles magnétiques (Figure IV-28 – E, Cercles rouges). Ce retour à une croissance sigmoïdale pourrait s'expliquer par le fait, qu'une fois les points de contact obstrués sous l'effet de magnétisme, le dépôt ne croît plus que dans l'espace central des pores comme dans le cas des nanoparticules de carbone (Figure IV-28 – F), tout en conservant un déséquilibre de masse déposée dans les zones de jonction de pôles magnétiques.

IV.3.2.3 Relation entre le degré de colmatage et la perte de charge

Comme mentionné dans le protocole expérimental, la perte de charge au cours des différents colmatages de nappe a été enregistrée afin de pouvoir être reliée aux observations visuelles et aux mesures d'obstruction des pores (Figure IV-29). Sur la figure ci-dessous, la perte de charge a été divisée par le débit afin de pouvoir comparer entre elles les expériences réalisées aux différentes vitesses de filtration. Ainsi, les résultats ont mis en évidence, indépendamment des conditions expérimentales, une croissance relativement lente de la perte de charge suivie d'une brusque augmentation de cette dernière à partir du moment où 80% de la surface des pores est obstruée.

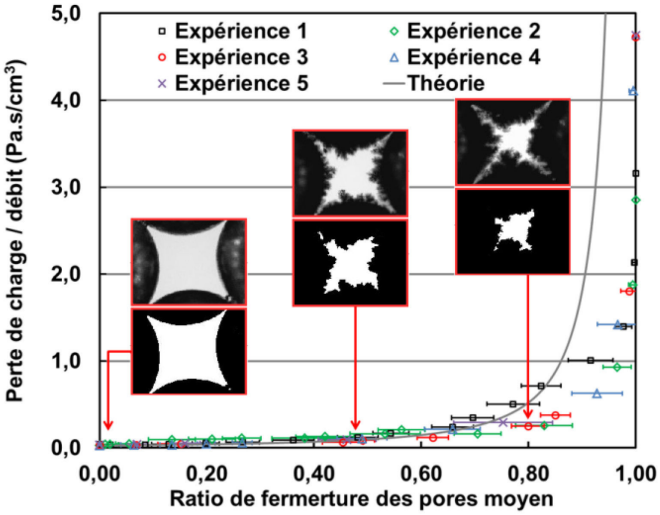


Figure IV-29 Perte de charge en fonction du degré de fermeture des pores

Ces résultats expérimentaux quasiment identiques jusqu'à un ratio de fermeture de 70-80%, malgré une porosité visuellement différente pour chaque vitesse superficielle et un dépôt localisé différemment dans les pores sous l'influence ou non d'un champ magnétique tend à prouver que pour cette plage de ratio fermeture le débit passe quasi-uniquement à travers la section non-obstruée des pores. Ainsi, du fait d'une grande résistance du dépôt à l'écoulement, il semblerait correct de considérer que l'augmentation initiale de la perte de charge ne résulte que du passage de la totalité du débit dans la section non-obstruée des pores. Pour vérifier cette hypothèse, l'évolution théorique de la perte de charge dans un pore de la nappe a été calculée et comparée aux données expérimentales. Comme le tube à étranglement formé entre 4 collecteurs sphériques est symétrique, la perte de charge (ΔP_{etr}) n'a été calculée que dans la partie convergente du tube. La valeur calculée a alors juste été multipliée par 2 pour avoir la perte de charge de la totalité du pore. Pour obtenir cette perte de charge, la partie convergente d'un pore a été discrétisée en n couches de même profondeur (ΔZ) dans lesquelles la loi de Poiseuille a été appliquée (équation 44). A la vue des résultats de simulation de l'écoulement dans un pore vierge (Figure IV-20), la section des n couches du convergent a été considérée comme carrée sur toute la profondeur (Figure IV-30).

$$\Delta P_{etr} = 2\sum_{j=0}^{n-1} \frac{32\, Q_{v,etr}\, \mu\, \Delta Z}{\left(\frac{w_{t,j} + w_{t,j+1}}{2}\right)^4} \qquad 44$$

Avec $Q_{v,etr}$ le débit dans un pore (débit total divisé par le nombre de pores), μ la viscosité dynamique du gaz et $w_{t,j}$ la largeur du pore en fonction de la profondeur.

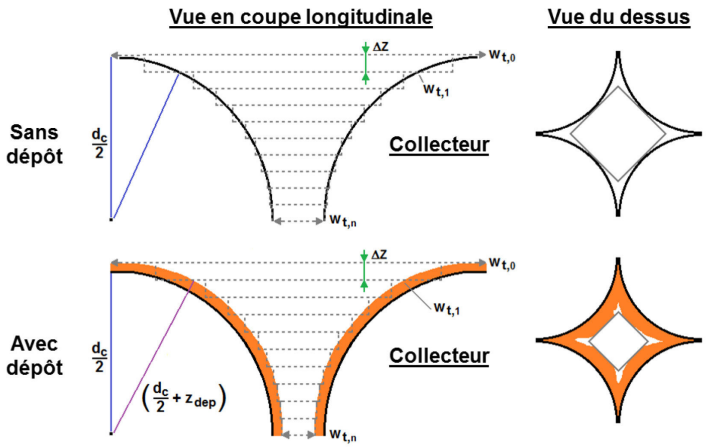


Figure IV-30 Représentations schématiques de la partie convergente d'un tube à étranglement (avec et sans dépôt)

Pour un arrangement carré de collecteurs sphériques, la largeur initiale dans le haut du tube à étranglement est donnée par :

$$w_{t,0} = \sqrt{2}d_c \qquad 45$$

Pour connaitre la largeur du tube dans chaque couche (i.e. à chaque profondeur), il est nécessaire de calculer l'épaisseur de dépôt, z_{dep}, pour un ratio de fermeture de la couche n (i.e. la plus étroite) donné. Le dépôt étant considéré comme uniforme sur toute la surface du tube, z_{dep} peut être obtenue en appliquant l'équation suivante :

$$z_{dep} = \frac{\left(1 - \sqrt{1-\gamma}\right)\left(\sqrt{2} - 1\right)d_c}{2} \qquad 46$$

La largeur du tube dans chaque couche étant considérée comme la moyenne des largeurs à l'entrée et à la sortie de la couche, il est alors possible connaissant z_{dep} de calculer la largeur de chacune d'elles en tenant compte de l'épaisseur du dépôt :

$$w_{t,j} = w_{t,0} - 2\sqrt{\left(\frac{d_c}{2} + z_{dep}\right)^2 - \left(\frac{d_c}{2} + z_{dep} - j\Delta Z\right)^2} \qquad 47$$

Les résultats de cette modélisation théorique représentés sur la Figure IV-29 et ceux des expériences sont en bon accord jusqu'à un ratio de fermeture d'environ 80%. Au-delà la modélisation théorique surestime significativement les résultats expérimentaux. Cela montre dans un premier temps que l'hypothèse d'une croissance de perte de charge liée au passage de 100% du débit dans la section libre du pore est fondée au moins jusqu'à un ratio de fermeture de 80%. Au-delà de cette valeur, soit le seuil d'obstruction à partir duquel la perte de charge expérimentale croît brusquement, la surestimation du modèle pourrait venir du fait que la différence de résistance à l'écoulement se réduit entre les zones obstruée et libre du pore. Ainsi, une partie du débit traverse le dépôt ce qui induit une diminution de la vitesse interstitielle dans le pore et donc une moins forte augmentation de perte de charge que dans notre modélisation. Une autre explication peut cependant être avancée et œuvrée en parallèle de la première. En effet, en examinant des images prises à faible grossissement (x25) représentant la quasi-totalité de la nappe pour un ratio de fermeture de 1 sur les 9 zones d'observations (Figure IV-26 – Exp. N°=2), il est possible de voir qu'un certain nombre de pores se sont débouchés sous l'effet de la montée en perte de charge. Ces pores libres, agissant comme des passages préférentiels, contribuent à réduire la perte de charge de la nappe et donc à accroître l'écart avec la modélisation.

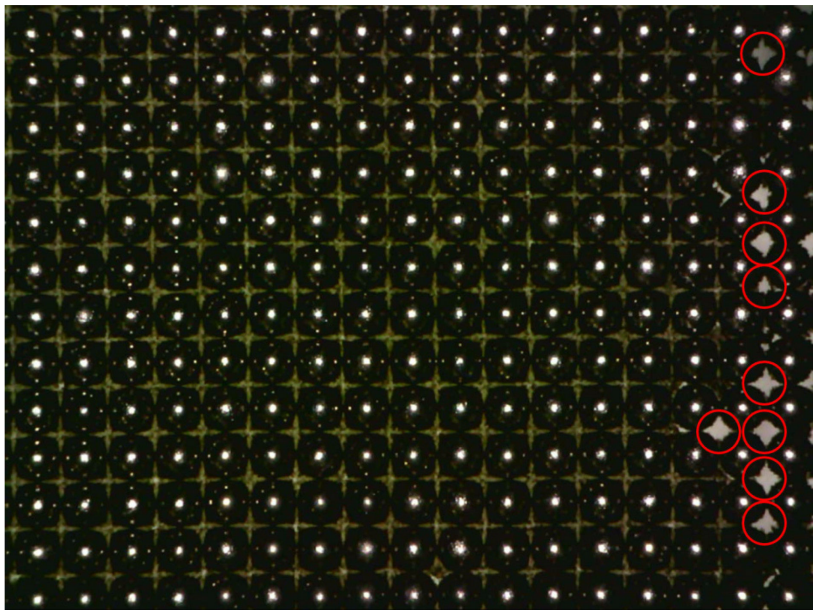


Figure IV-31 Observation à faible grossissement d'un nappe de collecteur au premier ratio de fermeture égal à 1 en présence de pores momentanément débouchés (cercles rouges) (x25, Exp. n°=2)

IV.4 Conclusions

Dans ce chapitre, une étude de la morphologie des dépôts de nanoparticules en surface de collecteurs sphériques a été effectuée. Afin de pouvoir réaliser ces observations de dépôts, un dispositif expérimental original utilisant des collecteurs aimantés a été développé. L'emploi de ce type de collecteurs a permis de former des lignes et des nappes de billes sans support interférant dans la formation du dépôt. Les analyses des observations réalisées sur la ligne de billes ont confirmé l'hypothèse d'un dépôt présentant une forme identique sur 360° autour des collecteurs lorsque la diffusion brownienne est le mécanisme de collecte prépondérant. Ces visualisations de dépôt ont également montré l'influence des points de contacts entre collecteurs, le dépôt prenant une forme elliptique avec une épaisseur nulle au niveau de ces derniers. Ce motif particulier a pu être expliqué par une approche combinée avec la mécanique des fluides numérique, les simulations d'écoulement ayant montré que la vitesse d'écoulement et par conséquent le débit massique d'air devenaient négligeables dans la zone des points de contact. Les colmatages de nappe de billes par différents aérosols (impactés ou non par le champ magnétique des collecteurs) ont quant à eux permis de confirmer les observations visuelles menées sur la ligne de billes (dépôt elliptique) et de relier le degré de fermeture des pores à l'évolution de la perte de charge. Il a ainsi pu être observé que cette évolution en fonction du ratio de fermeture des pores se déroule en deux phases distinctes. Durant la première, le dépôt ne réduit pas suffisamment la surface libre des pores pour engendrer une forte augmentation de la perte de charge. Cette hypothèse semble par ailleurs vérifiée par le fait que l'évolution de la perte de charge dans cette phase ne soit fonction que du degré d'obstruction et non de la porosité ou de la morphologie du dépôt dans les pores observés, notamment dans le cas des particules de fer. La deuxième phase est marquée par une augmentation brusque de la perte de charge à partir d'un ratio de fermeture de pore de 80%. Du fait de divergences avec une modélisation théorique considérant un dépôt imperméable, (i.e., surestimation par le modèle de la perte de charge pour des ratios de fermeture de plus de 80%), il a semblé que cette hypothèse pourrait ne plus être totalement valable pour de si hauts degrés de colmatage. En effet, plus les pores se rétrécissent, plus la vitesse interstitielle et donc la perte de charge augmentent.

Le rétrécissement de la section libre des pores provoque par ailleurs une modification de l'équilibre des débits entre la section libre des pores et le dépôt i.e., une augmentation de la fraction du débit passant au travers de ce dernier. Ces deux phénomènes étant antagonistes en regard de l'augmentation de la vitesse interstitielle, cela pourrait permettre d'expliquer en partie qu'un modèle considérant le dépôt comme imperméable surestime la perte de charge réelle. La différence entre ce type de modèle et les données expérimentales a pu être également attribuée lors de ces expériences à des débouchages de pores ayant lieu pour un degré de colmatage quasi-total. En effet, dans de telles situations, le ratio de fermeture était égal à l'unité sur les 9 zones d'observations alors qu'un ou plusieurs pores pouvaient s'être débouchés sous l'effet de la pression.

L'étude du colmatage de la nappe a finalement permis d'observer, pour des ratios de fermeture de pores d'environ 1, l'apparition d'une troisième phase présentant les mêmes caractéristiques que la phase C décrite au chapitre 2, à savoir une évolution linéaire de la perte de charge et l'apparition de fluctuations liées au débouchage/rebouchage des pores.

L'ensemble des résultats de cette étude de morphologie des dépôts permettant de mieux comprendre les phénomènes impliqués lors de la filtration par lit granulaire posent ainsi les bases du développement d'un modèle complet de colmatage de lits granulaires par des nanoparticules. Ce dernier est présenté au chapitre suivant.

Références

Chang, Y., L. Rong-Shin, et C. Wei-You. 2006. « The deposition morphology of Brownian particles onto a spherical collector ». *Separation and Purification Technology.* 52, 126–135.

Chang, Y., Y. Huang, Z. Luo, et G. Zhang. 2008. « A study on particle deposition morphology within a constricted tube in the presence and absence of the detachment mechanism ». *Separation and Purification Technology.* 63, 566–576.

Charvet, A., S. Bau, N. E. Paez Coy, D. Bémer, et D. Thomas. 2014. « Characterizing the effective density and primary particle diameter of airborne nanoparticles produced by spark discharge using mobility and mass measurements (tandem DMA/APM) ». *Journal of Nanoparticle Research.* 16, 1–11.

Cheng, M.-D., S.L. Allman, G.M. Ludtka, et L.R. Avens. 2014. « Collection of airborne particles by a high-gradient permanent magnetic method ». *Journal of Aerosol Science.* 77, 1–9.

Dunnett, S.J., et C.F. Clement. 2012. « Numerical investigation into the loading behaviour of filters operating in the diffusional and interception deposition regimes ». *Journal of Aerosol Science*. 53, 85–99.

Elmøe, T.D., A. Tricoli, J. Grunwaldt et S. Pratsinis. 2009. « Filtration of nanoparticles: Evolution of cake structure and pressure-drop ». *Journal of Aerosol Science.* 40, 965–981.

Gutfinger, C., and G.I. Tardos. 1979. « Theoretical and experimental investigation on granular bed dust filters ». *Atmospheric Environment*. 13, 853–867.

Kanaoka, C., H. Emi, S. Hiragi, T. Myojo. 1986. « Morphology of particulate agglomerates on a cylindrical fiber and collection efficiency of a dust loaded fiber ». *2nd International Aerosol Conference Proceedings*.

Kasper, G., S. Schollmeier et J. Meyer. 2010. « Structure and density of deposits formed on filter fibers by inertial particle deposition and bounce ». *Journal of Aerosol Science*. 41, 1167–1182.

Kusaka, Y., J.F.L. Duval et Y. Adachi. 2010. « Morphology and breaking of latex particle deposits at a cylindrical collector in a microfluidic chamber ». *Environmental Science & Technology.* 44, 9413–9418.

Kuwabara, S. 1959. « The Forces experienced by Randomly Distributed Parallel Circular Cylinders or Spheres in a Viscous Flow at Small Reynolds Numbers ». *Journal of the Physical Society of Japan.* 14, 527–532.

Payatakes, A.C. 1973. « A New Model for Granular Porous Media: Applications to Filtration Through Packed Beds » (Syracuse University).

Payatakes, A.C. et C. Tien. 1976. « Particle deposition in fibrous media with dendrite-like pattern: A preliminary model ». *Journal of Aerosol Science* 7, 85–100.

Payatakes, A.C., H.Y. Park et J. Petrie. 1981. « A visual study of particle deposition and reentrainment during depth filtration of hydrosols with a polyelectrolyte ». *Chemical Engineering Science.* 36, 1319–1335.

Prado, Y., N. Daffé, A. Michel, T. Georgelin, N. Yaacoub, J-M. Grenèche, F. Choueikani, E. Otero, P. Ohresser, M-A. Arrio, et al. 2015. « Enhancing the magnetic anisotropy of maghemite nanoparticles via the surface coordination of molecular complexes ». *Nature Communications.* 6, 10139.

Thomas, D., F-X. Ouf, F. Gensdarmes, S. Bourrous et L. Bouilloux. 2014. « Pressure drop model for nanostructured deposits ». *Separation and Purification Technology.* 138, 144–152.

V. Modélisation de la filtration d'aérosols de particules ultrafines par lits granulaires

L'un des objectifs principaux de cette étude étant de développer un outil de prédiction de l'évolution des performances d'un lit granulaire lors de son colmatage par des particules ultrafines, il a été décidé en parallèle de l'approche numérique (chapitre 3) d'établir notre propre modèle. Le travail décrit dans ce chapitre concernant son développement se base sur un ensemble de connaissances et d'observations obtenues à partir des expériences de colmatage (Chapitre 2), de la simulation numérique avec GeoDict® et de l'étude de morphologie des dépôts (Chapitre 4). Par ailleurs, ce travail s'inspire également de concepts issus d'une étude bibliographique décrite ci-après.

V.1 Etat de l'art

V.1.1 Modélisation des performances initiales des lits granulaires

V.1.1.1 Modélisation de l'efficacité initiale de collecte d'un lit granulaire

La capacité de collecte d'un lit granulaire peut être décrite comme l'accumulation des capacités de collecte de chaque collecteur pris indépendamment. L'efficacité d'un lit granulaire composé de collecteurs de diamètres identiques est exprimée de façon théorique par l'équation 48 en fonction de ses caractéristiques intrinsèques (porosité, profondeur, diamètre des collecteurs). Cette expression est obtenue par intégration d'un bilan de matière établi sur une fine couche de milieu filtrant (Diouri 1987) :

$$E_{LG} = 1 - \exp\left(-\frac{3}{2}\left(\frac{1-\epsilon_{LG}}{d_c}\right) z_{LG}\eta_T\right) \qquad 48$$

Avec ε_{LG} la porosité du lit granulaire, z_{LG} sa profondeur, d_c le diamètre des collecteurs. η_T correspond à l'efficacité unitaire totale (i.e., d'un collecteur au sein du lit granulaire) et est fonction de l'importance relative des différents mécanismes physiques de collecte (cf. chapitre 1). Un grand nombre d'auteurs approxime η_T à la somme des efficacités unitaires de collecte liées à chacun des mécanismes. Cette approximation est valide, si les efficacités de chaque mécanisme sont faibles ou si un mécanisme est prédominant, mais ne permet pas mathématiquement de limiter l'efficacité à une valeur maximale de 100%. Pour s'affranchir de cela, une autre approche, consistant à approximer la perméance[4] d'un collecteur comme le produit des perméances liées à chacun des mécanismes, a été utilisée. Ceci conduit à une efficacité unitaire totale s'exprimant (Mouret 2008):

$$\eta_T = 1 - \prod(1-\eta_i) \qquad 49$$

Avec i correspondant aux différents mécanismes de collecte.

[4] La perméance d'un filtre représente sa propension à laisser passer les particules sans les collecter. Elle se définit comme le rapport entre la quantité de particules sortant du filtre et celle en amont de ce dernier et est par conséquent égale à 1 moins l'efficacité de collecte.

V.1.1.2 Modélisation de l'efficacité initiale unitaire de collecte

D'après le chapitre 1, les seuls mécanismes de collectes significatifs dans le cas de la filtration d'aérosols nanométriques sont la diffusion brownienne et dans une bien moindre mesure l'interception. De ce fait, seuls les modèles d'efficacité initiale de collecte liés à ces deux mécanismes seront abordés dans cet état de l'art.
Similairement au chapitre 3 sur la simulation du colmatage avec GeoDict®, l'hypothèse est couramment faite lors du développement des modèles d'efficacité initiale par diffusion brownienne et interception qu'une collision particule/collecteur engendre systématiquement la collecte de la particule. Bien que l'on puisse trouver des corrélations empiriques dans la littérature, la majorité des modèles a été développée, du fait de cette hypothèse, sur la base de l'étude numérique de la trajectoire des particules passant autour d'un collecteur en résolvant leur équation de mouvement.

$$m_p \frac{d\overrightarrow{u_p}}{dt} = \frac{3\pi\mu d_p}{Cu}\left(\vec{u} - \overrightarrow{u_p}\right) - \overrightarrow{F_{ext}} \qquad 50$$

Avec u et u_p les vitesses du fluide et de la particule, Cu le coefficient de Cunningham, m_p la masse d'une particule, d_p son diamètre et μ la viscosité dynamique du fluide. Dans la partie droite de l'équation 50, le premier terme correspond à la force de trainée et le second (F_{ext}) à toutes les autres forces extérieures s'appliquant sur la particule. Ce dernier terme permet ainsi de tenir compte de l'influence des différents mécanismes. La résolution de cette équation nécessite la connaissance du champ d'écoulement dans le lit granulaire. L'obtention précise de ce champ par la résolution des équations de Navier-Stokes peut devenir rapidement complexe à cause du caractère aléatoire d'un empilement de sphères et demander une très importante puissance de calcul. Afin de faciliter la résolution de ces équations, les lits granulaires ont souvent été assimilés à des structures simplifiées. Ces représentations permettent ainsi d'obtenir des modèles théoriques d'écoulement autour d'un collecteur tout en tenant compte d'une certaine influence de ceux avoisinants. Dans tous ces modèles (cellulaires, géométriques ou statistiques), le champ des vitesses au passage d'un collecteur est déterminé à partir de leur fonction de courant respective. Dans les expressions de ces différentes fonctions de courant apparait un terme dépendant de la porosité du lit granulaire appelé facteur hydrodynamique (H). Ce terme peut être décrit comme un facteur correctif appliqué à la fonction de courant d'un écoulement autour d'un collecteur isolé dans un fluide infini (porosité = 1) obtenue par Lamb en 1932 (Tardos, Abuaf, et Gutfinger 1978) afin de tenir compte des collecteurs avoisinants (porosité < 1) (Tardos, Gutfinger, et Abuaf 1976). Tardos et al. (1978) ont donné la relation suivante entre la fonction de courant de Lamb (Ψ_1), celle d'un modèle d'écoulement dans un lit granulaire (Ψ_2) et le facteur hydrodynamique :

$$\psi_2 = H\Psi_1 = g(\epsilon_{LG})^3\Psi_1 \qquad 51$$

Avec $g(\varepsilon_{LG})$ une fonction de la porosité du lit granulaire propre au modèle d'écoulement choisi.

V.1.1.2.1 Modèles simplifiés d'écoulement à l'intérieur d'un lit granulaire

- **Modèles cellulaires**

Dans les modèles cellulaires (i.e., à maille sphérique unique), les collecteurs sphériques sont supposés être répartis de façon homogène dans le lit granulaire et entourés d'une enveloppe de fluide concentrique. Le collecteur et cette enveloppe de fluide forment ensemble une cellule. Le volume de cette couche de fluide est défini dans ces modèles comme étant égal au volume de pore associé à chaque collecteur dans le lit granulaire réel.

Ceci implique donc que le diamètre de l'enveloppe de fluide conduise à une porosité de la cellule identique à celle du lit granulaire (Tien et Ramarao 2011):

$$\frac{d_c}{d_{fl}} = (1 - \epsilon_{LG})^{\frac{1}{3}} \qquad 52$$

Où d_c est le diamètre des collecteurs et d_{fl} le diamètre externe de la cellule.
Le modèle à cellule le plus courant dans le cas des lits granulaires est celui de Happel (Happel 1958). Il est applicable dans tous les cas de mouvement relatif d'un fluide par rapport à un groupement de sphères. Cela comprend donc l'écoulement d'un fluide à travers un lit fixe, la fluidisation et la sédimentation d'un essaim de sphères (Figure V-1).

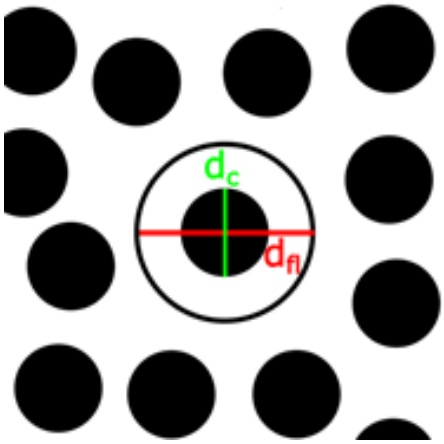


Figure V-1 Représentation schématique d'un collecteur de référence avec son enveloppe de fluide selon un modèle à cellule

Dans son modèle, Happel a spécifié certaines conditions aux limites d'une cellule. Ainsi, la vitesse du fluide à la surface du collecteur et la force de frottement avec la surface extérieure de la cellule sont considérées comme nulles. Par ailleurs, aucun flux à travers la délimitation de l'enveloppe n'étant pris en compte, la perturbation liée à chaque collecteur est confinée à l'intérieur de la couche de fluide associée. En considérant que cette couche se déplace autour d'un collecteur à une vitesse superficielle, U, les équations de Navier-Stokes ont été résolues en négligeant les termes inertiels permettant ainsi d'obtenir la fonction de courant correspondante à ce modèle (Pfeffer 1964). La fonction $g(\varepsilon_{LG})$ issue de ce modèle est la suivante (Tardos, Abuaf, et Gutfinger 1978):

$$g_H(\epsilon_{LG}) = \left(\frac{2\left(1 - (1 - \epsilon_{Lg})^{\frac{5}{3}}\right)}{2 - 3(1 - \epsilon_{LG})^{\frac{1}{3}} + 3(1 - \epsilon_{LG})^{\frac{5}{3}} - 2(1 - \epsilon_{LG})^2} \right)^{\frac{1}{3}} \qquad 53$$

Cette fonction obtenue par Pfeffer (1964) en négligeant les effets inertiels n'est valable pour de très faibles nombres de Reynolds particulaires basés sur le diamètre d'un collecteur $\left(Re_c = \frac{\rho_{fl} d_c U}{\mu}\right)$, i.e., inférieurs ou égaux à 0,01.

- **Modèles incluant un milieu poreux effectif (modèles géométriques)**

Les approches cellulaires telles que celle de Happel ont pour inconvénient de confiner l'effet des sphères sur l'écoulement dans un voisinage très proche des collecteurs, i.e., la cellule. Ce type de modèle n'est par conséquent pas assez réaliste pour représenter l'écoulement dans un lit granulaire. Pour pallier ce problème, des auteurs ont proposé des modèles permettant de mieux prendre en compte l'environnement d'un collecteur de référence en introduisant autour de ce dernier une matrice poreuse, appelée milieu poreux effectif.
Le premier modèle de ce type est celui de Brinkman (Brinkman 1949) et il constitue la base de cette famille de modèles. Il a été développé dans le cadre d'une étude visant à obtenir la force de trainée exercée par un fluide sur un collecteur sphérique dans un milieu granulaire. Dans ce type de milieu poreux et en régime laminaire, l'écoulement d'un fluide incompressible est décrit par la loi de Darcy qui s'exprime grâce à la relation suivante :

$$-\vec{\nabla}P = \frac{\mu\vec{U}}{K} \qquad 54$$

Avec K la perméabilité du milieu poreux, μ la viscosité et U la vitesse superficielle.
La nécessité d'un nouveau modèle pour les travaux de Brinkman vient du fait que les frottements sur les parois solides du milieu poreux sont négligés dans la loi de Darcy et donc que la condition de non-glissement, i.e., la vitesse nulle de fluide à l'interface fluide/solide, n'est pas prise en considération. Pour tenir compte de ce phénomène, Brinkman a donc modifié la loi de Darcy en y ajoutant un terme de frottements visqueux provenant de la résolution des équations de Navier-Stokes dont les termes inertiels sont négligés :

$$-\vec{\nabla}P = \frac{\mu\vec{U}}{K} + \mu\nabla^2\vec{U} \qquad 55$$

Au-delà de prendre en compte le phénomène de non-glissement, cette équation présente l'avantage de décrire de manière continue le passage d'un écoulement de type Darcy (au travers d'un milieu macroscopique) à un écoulement de type Stokes (écoulement libre autour d'un solide). En effet, lorsque le milieu est très poreux (ε tendant vers 1 et perméabilité très importante), l'équation 55 prend la forme de l'équation de Stokes. A l'inverse lorsque la porosité est faible, la perméabilité le devient aussi et le terme correspondant à l'équation de Darcy devient prépondérant.

Sur la base de la relation de Brinkman, Neale et Nader (1974) ont développé un modèle hybride avec la famille des modèles cellulaires. En effet, ce modèle considère non pas un collecteur seul mais une cellule entourée par une matrice poreuse (Figure V-2). Pour éviter toute perturbation locale de la porosité uniforme de la matrice poreuse, le diamètre de l'enveloppe de fluide est défini de la même manière que dans le cas du modèle d'Happel (équation 52). Pour obtenir le champ d'écoulement dans un lit granulaire grâce à ce modèle, la démarche consiste donc à résoudre les équations adaptées à chaque zone de cette structure simplifiée puis à connecter à l'interface leur solution respective en fonction des conditions aux limites et d'uniformité.

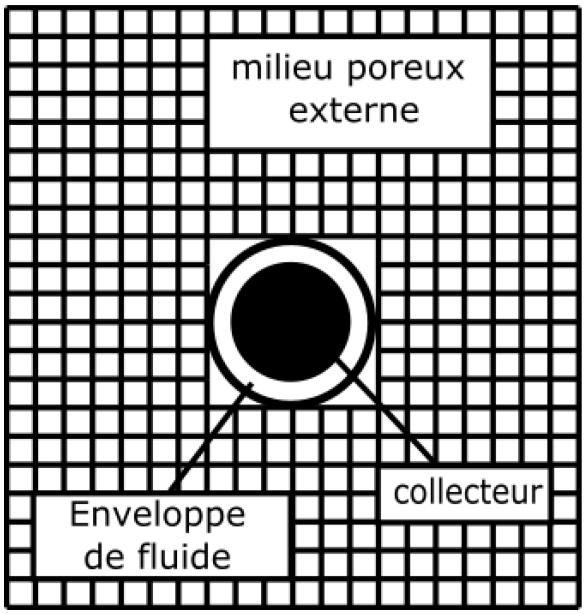


Figure V-2 Représentation schématique du milieu poreux de Neale et Nader

Similairement au modèle de Happel, les auteurs ont suggéré de résoudre les équations de Navier-Stokes dans la cellule en négligeant les termes inertiels. Dans le milieu poreux extérieur, une description macroscopique de l'écoulement étant requise, il serait possible d'appliquer la loi de Darcy comme dans le cas de la relation de Brinkman (Tardos, Abuaf, et Gutfinger 1978). Cependant à travers le lit granulaire et particulièrement à l'interface entre la cellule et le milieu poreux extérieur, il doit y avoir continuité de la pression, des composantes de la vitesse et des contraintes visqueuses. Cette dernière condition de continuité ne pouvant pas être satisfaite par la loi de Darcy du fait de l'absence du terme de frottements correspondant, les auteurs ont utilisé la loi de Brinkman décrite précédemment pour le milieu poreux externe. La fonction $g(\varepsilon_{LG})$ issue de ce modèle est la suivante (Tardos, Gutfinger, et Abuaf 1976):

$$g_{NN}(\epsilon_{LG}) = \left(\frac{6\begin{pmatrix} -4\beta^6 - 14\beta^5 - 30\beta^4 - 30\beta^3 + 10\beta^4\alpha^2 - \\ 5\beta^3\alpha^3 + 10\beta^3\alpha^2 + 5\beta^2\alpha^3 - \beta\alpha^5 - \alpha^5 \end{pmatrix}}{\begin{matrix} -4\beta^6 - 24\beta^5 - 180\beta^4 - 180\beta^3 + 9\beta^5\alpha + 45\beta^4\alpha - \\ 10\beta^3\alpha^3 + 180\beta^3\alpha - 30\beta^2\alpha^3 + 9\beta\alpha^5 - 4\alpha^6 + 9\alpha^5 \end{matrix}} \right)^{\frac{1}{3}} \qquad 56$$

Av $\beta = \frac{\alpha}{(1-\epsilon_{LG})^{\frac{1}{3}}}$ ec, $\alpha = \frac{d_c}{2\sqrt{K}}$ et K la perméabilité du milieu poreux.

Cette fonction ayant été obtenue en négligeant les effets inertiels dans la cellule, elle n'est valable en théorie que pour des valeurs de Re_c, inférieures ou égales à 0,01. Cependant, un très bon accord a pu être observé lors de comparaisons entre ce modèle et des mesures de force de trainée sur un collecteur pour des valeurs de Re_c allant jusqu'à 10 (Tardos, Abuaf et Gutfinger 1978). L'expression de la fonction $g(\varepsilon)$ relative à ce modèle présente à première vue l'inconvénient d'être longue et complexe. Une forme simplifiée peut cependant être utilisée pour des porosités comprises entre 35% et 70%, soit valable dans tous les cas classiquement rencontrés lors de la filtration par lits granulaires :

$$g_{NN}(\epsilon_{LG}) = \frac{1{,}31}{\epsilon_{LG}} \qquad 57$$

- **Modèles statistiques**

Le modèle statistique d'écoulement le plus connu est celui de Tam (Tam 1969). Similairement à celui de Brinkman, le modèle d'écoulement de Tam a été développé dans le but d'établir une expression de la force de traînée s'exerçant sur une particule sphérique au sein d'un nuage de particules traversé par un écoulement. Cependant, Brinkman ayant développé son modèle en modifiant la loi empirique de Darcy, il ne peut pas être considéré comme une solution rigoureusement théorique. Pour pallier ce problème, Tam a utilisé une méthode d'analyse statistique pour établir un modèle s'affranchissant de toute hypothèse empirique. En considérant le caractère aléatoire d'un nuage de particules, l'auteur a pu obtenir les équations décrivant les propriétés moyennes du mouvement du fluide. Ces moyennes ont été calculées sur un ensemble statistique de répartitions des particules. Grâce à cette méthode, Tam a pu retrouver pour un écoulement moyen une équation prenant la même forme que celle développée par Brinkman. La solution développée dans ce modèle peut être représentée comme l'écoulement le plus probable autour d'une des particules au sein du nuage (Tardos, Abuaf, and Gutfinger 1978). La fonction g(ε) issue de ce modèle est la suivante (Tardos, Gutfinger, et Abuaf 1976) :

$$g_T(\epsilon_{LG}) = \left(\frac{2 + 1{,}5(1-\epsilon_{LG}) + 1{,}5(8(1-\epsilon_{LG}) - 3(1-\epsilon_{LG})^2)^{\frac{1}{2}}}{\epsilon_{LG}\left(2 - 3(1-\epsilon_{LG})\right)} \right)^{\frac{1}{3}} \qquad 58$$

Cette fonction ayant été obtenue en négligeant les effets inertiels, elle n'est valable en théorie que pour des valeurs de Re_c inférieures ou égales à 0,01. Néanmoins, la validité de cette fonction correctrice a été vérifiée jusqu'à $Re_c = 1$ et pour des porosités supérieures à 33%.

V.1.1.2.2 Efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne

- **Modèles basés sur le calcul des trajectoires des particules autour d'un collecteur**

Les collisions des molécules de gaz avec les particules de l'aérosol produisent une force aléatoire qui agit sur ces dernières et entraîne leur mouvement brownien. Du fait de ces collisions aléatoires, les particules seraient réparties de façon spatialement uniforme dans un milieu infini sans obstacle. Dans un milieu filtrant, la présence des collecteurs rompt cette uniformité. Un gradient de concentration particulaire apparait alors entre la surface des collecteurs et une zone suffisamment éloignée où cette concentration reste constante. A cause de ce gradient, un flux diffusionnel entre le cœur de l'écoulement et la surface des collecteurs s'établit. Ce flux est caractérisé par une vitesse de diffusion des particules relative à celle du fluide porteur. De ce mouvement relatif des particules résulte une force de diffusion qui agit contre la force de trainée et qui peut être prise en compte dans l'équation **50** par :

$$\overrightarrow{F_{ext}} = \frac{3\pi\mu d_p \overrightarrow{u_{Br}}}{Cu} \qquad 59$$

Avec u_{Br} la vitesse relative de diffusion des particules. Cette vitesse peut être obtenue à partir de la loi de Fick qui régit le transfert par diffusion :

$$\vec{J} = D_{Br}\,\vec{\nabla}C \qquad 60$$

Avec J le flux de diffusion des particules au voisinage immédiat d'un collecteur, D_{Br} le coefficient de diffusion brownienne et C la concentration particulaire.

La résolution de la forme adimensionnelle des équations 50 et 60 permet d'obtenir pour un modèle d'écoulement donné les trajectoires des particules en tenant compte du phénomène de diffusion brownienne. L'intérêt de la résolution des équations adimensionnelles est d'obtenir par la suite des relations faisant intervenir les nombres adimensionnels caractéristiques du phénomène étudié, soit le nombre de Péclet (Pe) dans le cas de la diffusion. A partir de cette résolution, il est possible de connaitre le flux, J_T, de particules (nombre de particules par unité de temps) se dirigeant vers un collecteur au travers d'un disque de diamètre d_c ainsi que le flux, J_d, de particules se déposant à la surface du collecteur (nombre de particules collectées par unité de temps) (Figure V-3). L'efficacité unitaire de collecte par diffusion est alors définie comme le rapport de ces deux flux, i.e., J_d / J_T. Pour plus de détails sur la méthode de calcul de cette efficacité unitaire, le lecteur peut se référer à Tardos et al. (1976).

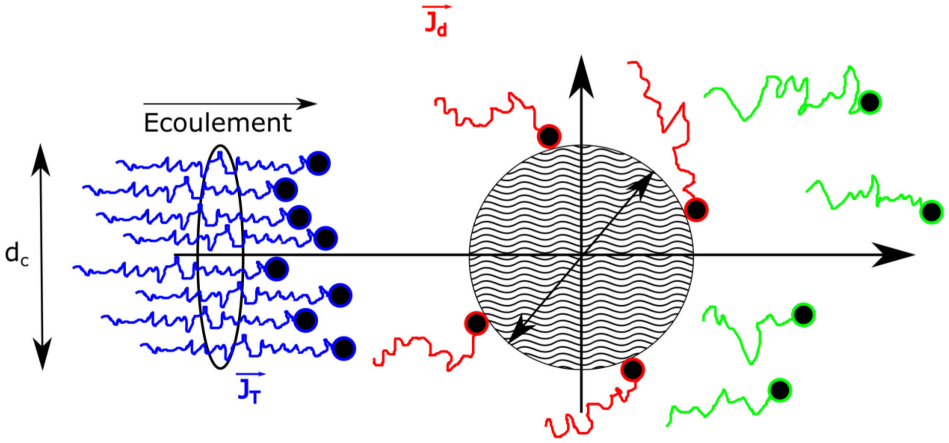


Figure V-3 Représentation schématique du calcul de l'efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne (Flux total en bleu, Flux collecté en rouge, Flux non-collecté en vert)

Le cas de la diffusion vers une sphère isolée dans un fluide infini a été résolu par Levich (Levich 1962) en utilisant le modèle d'écoulement de Lamb :

$$\eta_{Br} = 3{,}988\ \mathrm{Pe}^{-\frac{2}{3}} \qquad 61$$

Comme mentionné précédemment, la déviation des fonctions de courant des différents modèles d'écoulement à celle du modèle de Lamb peut être exprimée par un facteur hydrodynamique propre à chacun d'eux (équation 51). Sur le même principe, il a pu être montré que l'efficacité unitaire de collecte par diffusion pouvait être obtenue en corrigeant l'équation 61 pour les différents modèles d'écoulement (Tardos, Gutfinger, et Abuaf 1976) :

$$\eta_{Br} = 3{,}988\ g(\epsilon_{LG})\ \mathrm{Pe}^{-\frac{2}{3}} \qquad 62$$

- **Modèles empiriques**

En parallèle des modèles théoriques, des corrélations empiriques ont également été développées. Parmi elles, certaines ont été établies par analogie avec la diffusion moléculaire dans les liquides. Les coefficients de diffusion brownienne dans les gaz sont beaucoup plus faibles (10^{-9} – 10^{-11} m²/s) que ceux de diffusion moléculaire dans ce même milieu (10^{-5} m²/s). Par conséquent, le nombre de Schmidt ($Sc = \frac{\mu}{\rho\ D_{Br}}$) dans le cas de la diffusion brownienne dans les gaz est très grand similairement à celui de la diffusion moléculaire dans les liquides.

L'hypothèse est donc faite pour ce type de corrélations que la filtration d'un aérosol par diffusion brownienne devrait alors être analogue à un transfert de matière dans les liquides. Une corrélation très utilisée pour ce type de transfert de matière à grand nombre de Schmidt et faible nombre de Reynolds dans les liquides est la corrélation empirique de Wilson et Geankoplis (Wilson et Geankoplis 1966). En réutilisant le formalisme de l'équation 62, cette corrélation fournit une fonction correctrice $g(\varepsilon_{LG})$:

$$g(\epsilon_{LG}) = \frac{1{,}093}{\epsilon_{LG}} \qquad 63$$

Cette corrélation ayant été développée pour des transferts de matière à faible nombre de Reynolds, sa validité s'étend jusqu'à $Re_c = 10$.

Les différentes corrélations présentées précédemment ayant été établies pour des écoulements rampants ($Re_c < 1$) ou laminaires ($Re_c < 10$), certains auteurs ont développé des corrélations empiriques afin de couvrir les régimes intermédiaire et purement turbulent ($Re_c > 2000$).
Ainsi D'ottavio et Goren (1982) ont défini une autre forme de facteur hydrodynamique (et donc de $g(\varepsilon_{LG})$) dans une étude sur l'impaction inertielle. En effet, ce mécanisme de collecte étant prédominant à vitesses d'écoulement importantes, des facteurs hydrodynamiques valables au-delà de $Re_c = 10$ sont nécessaires. Pour couvrir une plage allant de $Re_c << 1$ à $Re_c >2000$, les auteurs de ce modèle ont supposé que le facteur hydrodynamique pouvait être considéré comme étant la somme d'un facteur hydrodynamique valable en régime laminaire et d'un autre valable en régime purement turbulent. Bien que la partie laminaire puisse être représentée par n'importe quel modèle d'écoulement parmi ceux présentés précédemment, D'Ottavio et Goren ont choisi celui de Happel. La partie turbulente est quant à elle décrite par une équation du facteur hydrodynamique établie par Schlichting en 1960 :

$$H_{Sch} = 1{,}14\, Re_c^{\frac{1}{2}} \qquad 64$$

Le facteur hydrodynamique de D'Ottavio et Goren s'écrit alors en considérant :

$$H_{OT} = H_H + H_{Sch} \qquad 65$$

Avec H_H le facteur hydrodynamique d'après le modèle de Happel.
On obtient par conséquent en utilisant le formalisme de l'équation 48 :

$$g_{OT}(\epsilon_{LG}, Re_c) = (H_H + H_{Sch})^{\frac{1}{3}} \qquad 66$$

Dans une autre démarche globale visant tous les mécanismes de collecte, Otani et al. (1989) ont développé trois corrélations empiriques chacune étant valable pour une plage de nombre de Reynolds différentes allant de l'écoulement rampant ($Re_c < 1$) à potentiel ($Re_c \to \infty$). Théoriquement, l'efficacité unitaire de collecte par diffusion est proportionnelle à $Pe^{-2/3}$ pour un écoulement rampant et à $Pe^{-1/2}$ pour des écoulements potentiels. De plus, le nombre de Péclet peut s'écrire comme le produit du nombre de Reynolds par le nombre de Schmidt. En partant de ces constatations et grâce à leurs résultats expérimentaux, Otani et al. ont pu observer qu'en régime diffusionnel la dépendance de l'efficacité unitaire de collecte au nombre de Schmidt change en fonction du nombre de Reynolds. (en dehors des cas limites $Re_c < 1$ et $Re_c \to \infty$). A partir de ces observations, ils ont proposé de décorréler les exposants des nombres de Schmidt et de Reynolds dans l'expression du nombre de Péclet et de les faire varier en fonction du régime d'écoulement.

Otani et al. ont obtenu empiriquement les expressions suivantes :

$$\eta_{\mathrm{Br}} = \mathrm{A}\,(\mathrm{Re_c})\, Sc^{f_1(Re_c)} \left(\frac{Re_c}{\epsilon_{LG}}\right)^{f_2(Re_c)} \qquad 67$$

Avec:

$$\mathrm{f_1(Re_c)} = -\frac{2}{3} + \frac{\left(\frac{\mathrm{Re_c}}{\epsilon_{\mathrm{LG}}}\right)^3}{6\left(\left(\frac{\mathrm{Re_c}}{\epsilon_{\mathrm{LG}}}\right)^3 + 2.10^5\right)} \qquad 68$$

Les valeurs des fonctions A et f_2 dans l'équation 67 sont données pour trois plages de valeurs de Re_c :

Re_c	A	f_2
Inférieur à 30 x ε_{LG}	8	-2/3
Entre 30 x ε_{LG} et 100 x ε_{LG}	40	-1,15
Supérieur à 100 x ε_{LG}	2,1	-1/2

V.1.1.2.3 Efficacité unitaire de collecte par interception dans un lit granulaire

L'interception est un mécanisme qui devient significatif en termes de taille de particules entre la diffusion brownienne et l'impaction inertielle, soit quelques dixièmes de micromètres. La collecte par pure interception se fait si toutes les forces autres que la trainée agissant sur les particules sont négligeables. Dans ce cas les particules suivent les lignes de courant. La capture par interception a donc lieu si une ligne de courant passe à une distance du collecteur inférieure au rayon de la particule. L'interception est une conséquence de la taille finie des particules et peut être décrite par le paramètre d'interception, R, qui s'exprime comme le rapport entre le diamètre des particules et celui des collecteurs. Il existe, pour des valeurs R inférieures à 0,01, des modèles théoriques basés sur le calcul des trajectoires en fonction du modèle d'écoulement choisi. Dans l'hypothèse d'une pure interception, les trajectoires sont calculées en résolvant l'équation 50 avec $F_{ext} = 0$. A partir de cette résolution, la trajectoire limite au-delà de laquelle une particule ne rencontre pas la surface d'un collecteur (Figure V-4) et la distance (b) de cette trajectoire par rapport à l'axe de symétrie horizontale peuvent être calculées (Gutfinger et Tardos 1979). Il est important de préciser qu'une particule est collectée lorsque sa trajectoire passe à une distance du collecteur inférieure ou égale au rayon de la particule. L'efficacité unitaire de collecte est alors obtenue en la définissant comme le rapport entre la section du disque de diamètre 2b et celle du disque de diamètre d_c.

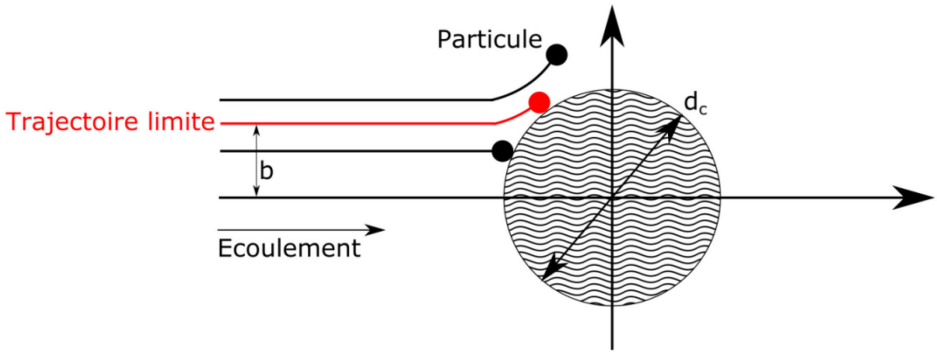


Figure V-4 Représentation schématique du concept de trajectoire limite (D'après Gutfinger et Tardos 1979)

Par cette méthode, Gutfinger et Tardos (1979) ont obtenu l'expression suivante :

$$\eta_R = 1{,}5\ g(\epsilon_{LG})\ R^2 \qquad 69$$

V.1.1.3 Modélisation de la perte de charge initiale d'un lit granulaire

Les modèles d'écoulement développés pour les efficacités unitaires de collecte sont de type particulaire, l'écoulement étant calculé autour d'un collecteur de référence. Il existe cependant une autre catégorie de modèles d'écoulement dits capillaires dans lesquels le milieu poreux est assimilé à un faisceau de tubes enchevêtrés droits, identiques dans lesquels s'écoule un fluide. Dans certains cas, les tubes décrivant le milieu poreux peuvent également prendre la forme d'un étranglement représentant le pore formé par des collecteurs sphériques (Payatakes 1973). Concernant le calcul de la perte de charge, il a été évoqué au chapitre 3 qu'une limite d'applicabilité existait pour ce type de modèle. En effet, il a pu être démontré théoriquement qu'il était dans tous les cas préférable d'appliquer des modèles capillaires lorsque les porosités sont inférieures à environ 0,65. Au-delà de cette valeur, la limite d'applicabilité dépend du régime d'écoulement et donc du nombre de Reynolds (Punčochář et Drahoš 2000; Mauret et Renaud 1997). La porosité d'un lit granulaire étant d'environ 37%, seuls des modèles capillaires sont décrits dans cette partie.

V.1.1.3.1 Cas des écoulements laminaires

Dans la plupart des cas de filtration par lits granulaires, le régime d'écoulement est laminaire (Re_c<10) et sa perte de charge peut-être calculée par la loi de Darcy (équation 54) mise sous la forme suivante:

$$\Delta P = \frac{1}{K}\mu U z_{LG} \qquad 70$$

Le développement d'un modèle de perte de charge en milieux poreux consiste donc de manière générale à exprimer de différentes façons sa perméabilité darcéenne ou visqueuse (K). Le modèle capillaire le plus courant est celui de Kozeny-Carman basé sur l'application de la loi de Poiseuille dans des capillaires droits dont la section est fonction des propriétés macroscopiques du milieu poreux modélisé (porosité, diamètre des collecteurs).

L'expression de K par la loi de Kozeny-Carman est la suivante :

$$K_{KC} = \frac{d_c^2\ \epsilon_{LG}^3}{36\ h_k\ (1-\epsilon_{LG})^2} \qquad 71$$

L'équation 71 fait intervenir la constante de Kozeny-Carman, h_k. Pour un lit de collecteurs sphériques de même diamètre, cette constante est comprise entre 4,5 ± 1,5 pour des porosités n'excédant pas 0,8 (Charpentier 1999). Elle peut également être calculée en fonction de la porosité. Il existe plusieurs expressions qui donnent des résultats très proches, la principale étant celle de Carroll (1965) :

$$h_k = 5 + \exp\big(14\ (\epsilon_{LG} - 0{,}8)\big) \qquad 72$$

V.1.1.3.2 Cas des écoulements non-laminaires

Dans les cas des régimes d'écoulement non-laminaires (Re_c >10), un terme est ajouté à la loi de Darcy pour devenir la loi de Forchheimer. Cette loi permet de tenir compte des effets inertiels dus à l'augmentation de la vitesse du fluide :

$$\Delta P = \frac{1}{K}\mu U z_{LG} + \frac{1}{K_i}\rho_{fl} U^2 z_{LG} \qquad 73$$

Pour ce type d'écoulement, l'expression de K ne change pas et peut correspondre à celle de n'importe quel modèle de perte de charge en régime laminaire. La perméabilité non-darcéenne ou inertielle, K_i peut être exprimée de la façon suivante:

$$K_i = \frac{d_c\, \epsilon_{LG}^3}{6\, h_b\, (1 - \epsilon_{LG})} \qquad 74$$

Avec h_b la constante de Burke-Plummer valant usuellement environ 0,3. Un grand nombre d'autres valeurs sont disponibles dans la littérature pour le couple h_k/h_b (Pesic et al. 2015). Ainsi h_k peut varier selon les études de 4,16 à 5,55 et h_b peut prendre des valeurs comprises entre 0,29 et 0,67. La valeur de cette dernière est souvent corrélée à la rugosité de la surface des collecteurs (Macdonald et al. 1979).

V.1.2 Modélisation de la perte de charge d'un dépôt de particules ultrafines

La modélisation de la filtration de particules ultrafines par un lit granulaire consistant en la prédiction de l'évolution de ses performances au cours du dépôt des particules, il semble également important de caractériser la résistance à l'écoulement de ce dernier. Il existe dans la littérature un certain nombre de modèles de perte de charge spécifiques à cette problématique. La porosité de dépôt de nanoparticules étant très supérieure à 37% et souvent au-delà de 90% (Thomas et al. 2014), ces modèles sont de type particulaire et se basent sur le calcul de la force de traînée subie par une particule pour obtenir une expression de la perméabilité du dépôt.
L'un des modèles les plus récents est le modèle de Thomas et al. (2014). Il a été choisi car il correspond particulièrement bien aux particules filtrées lors de cette étude. En effet, les auteurs ont proposé pour les particules nanostructurées (agrégats ou agglomérats) un modèle basé sur la relation empirique de Davies développée à l'origine pour des médias fibreux plans (Davies 1973).

Dans leur modèle, Thomas et al. ont assimilé le dépôt des particules à un empilement de fibres dont le diamètre est égal à celui des particules primaires composant les particules nanostructurées et dont la longueur vaut 2/3 de la longueur équivalente d'une fibre (rapport entre le volume d'un cylindre et d'une sphère). Dans le cas des agrégats, les particules primaires peuvent être partiellement fusionnées. Pour tenir compte de l'effet de ce chevauchement, la longueur équivalente est corrigée par le coefficient de recouvrement, C_0. D'après l'expression de la force de traînée sur une fibre cylindrique, les auteurs ont obtenu la relation suivante pour la perméabilité du dépôt, K_d :

$$K_d = \frac{Cu\, d_{pp}^2}{64\, (1 - \epsilon_d)^{0,5}\, (1 + 56\, (1 - \epsilon_d)^3)\, F_c} \qquad 75$$

Avec d_{pp} le diamètre des particules primaires, ε_d la porosité du dépôt, et F_c un terme de recouvrement fonction du coefficient de recouvrement, C_0.

$$F_c = \frac{1 - C_0}{\frac{2}{3} - C_0^2 \left(1 - \frac{C_0}{3}\right)} \qquad 76$$

Dans le cas d'agglomérats, les particules primaires ne se chevauchant pas, C_0 est nul ce qui implique qu'un F_c soit égal à 1,5.

Comme dans tous les modèles d'écoulement, la porosité du milieu poreux est un paramètre clé. Si celle d'un empilement aléatoire de sphères est théoriquement parfaitement connue, la porosité d'un dépôt de particules nanostructurées s'avère plus difficile à évaluer du fait de leur forme non-sphérique et de leur porosité interne (i.e., entre particules primaires). Thomas et al. ont développé dans la même étude, une corrélation empirique fonction du nombre de Péclet et déjà utilisée au chapitre 3 sur la simulation du colmatage. Cette relation est rappelée ci-dessous :

$$\epsilon_d = \frac{1 + 0{,}438\ Pe_d}{1{,}019 + 0{,}464\ Pe_d} \qquad 77$$

On rappelle également que dans l'équation 77, le nombre de Péclet (Pe_d) est calculé en fonction du diamètre équivalent en mobilité électrique médian des particules nanostructurées. De plus, la vitesse utilisée dans la relation est la vitesse interstitielle (U/ε_{LG}) pour tenir compte du fait que le dépôt se forme à l'intérieur des pores et non en surface du lit granulaire.

V.1.3 Modélisation de l'évolution des performances des lits granulaires au cours du colmatage

La première partie de cette étude bibliographique a permis de montrer que l'état initial de la filtration d'aérosols de nanoparticules par lits granulaires est très bien documenté et décrit avec une assez bonne précision. Cette bonne connaissance du comportement des lits granulaires vierges est importante car elle permet une initialisation du problème n'introduisant logiquement pas d'erreurs significatives dans le calcul de l'évolution des performances sous l'effet du dépôt des particules. La prédiction de l'évolution de l'efficacité et de la perte de charge au cours du colmatage étant nécessaire au dimensionnement, au contrôle et à l'optimisation du procédé, un nombre important de modèles de colmatage ont été développés lors des 4 dernières décennies tant sur la filtration d'hydrosols (fluide porteur liquide) que d'aérosols. Bien que la classification de ces modèles puisse se faire selon cette différence de fluide porteur, il a été décidé dans cette section de les regrouper selon leur méthode de développement, i.e., phénoménologique et rationnelle.

V.1.3.1 Modélisation phénoménologique

Les modèles de colmatage les plus anciens sont dits phénoménologiques car ils décrivent la réponse du lit granulaire, en tant que système, au passage d'un fluide chargé de particules. Le terme de modèles macroscopiques est également employé, car ils ne fournissent aucune information quant à la nature des mécanismes responsables de la collecte à l'échelle des particules. Cette approche décrit le procédé au moyen d'un jeu d'équations différentielles incluant des paramètres fonctions des caractéristiques du filtre et du mélange fluide/particules à filtrer. La modélisation phénoménologique est basée sur une équation de conservation de la masse de particules, l'équation de convection-diffusion. Elle représente le transfert de masse local et prend en compte les changements de concentration et de porosité dans le temps et l'espace. Une méthode de résolution de cette équation appliquée à la problématique de la filtration en profondeur a été développée moyennant un certain nombre d'hypothèses (Herzig, Leclerc et Le Goff 1970).

La plus courante consiste à supposer que la concentration en particules ainsi que la vitesse superficielle sont uniformes sur la section du filtre perpendiculaire à l'écoulement, engendrant une uniformité du dépôt sur cette section. Ces hypothèses signifient que le modèle peut être vu comme spatialement unidimensionnel et donc que la concentration et la quantité de dépôt ne varient qu'en fonction de la profondeur. Herzig et al. (1970) ont ajouté 3 autres hypothèses simplificatrices :

- La diffusion axiale est négligeable selon z (la direction de l'écoulement) par rapport au flux convectif.
- La porosité du milieu poreux peut être considérée comme constante au cours de la filtration dans le cas de faibles concentrations en volume particulaire et de faibles dépôts spécifiques, ω (volume de dépôts par unité de volume de lit granulaire). Bien que cette simplification ne soit justifiée qu'au départ du colmatage, Herzig et al. l'ont considérée comme valide durant toute la durée du colmatage du fait des faibles concentrations.
- Dans le bilan massique régissant ce problème, toutes les particules non-déposées circulant dans le lit granulaire sont négligées en comparaison de celles collectées. Cette hypothèse n'est donc valable qu'à partir d'une certaine quantité de dépôt.

A partir de ces hypothèses l'équation de conservation s'écrit :

$$\left(\frac{\partial \omega}{\partial \theta}\right) = -U\left(\frac{\partial C}{\partial z}\right) \qquad 78$$

Avec ω le dépôt spécifique et θ un temps corrigé qui permet de tenir compte du décalage temporel entre le moment où un élément de volume de fluide entre dans le lit granulaire et celui où ce même volume atteint une profondeur z. Dans l'équation 78, le terme de gauche correspond à un taux de filtration (quantité déposée par unité de temps). Des expériences de filtration à travers un lit de sable (Iwasaki 1937) ont montré que le profil de concentration à travers le filtre, peut souvent être décrit par la loi suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial z} = -\lambda C \qquad 79$$

λ est le coefficient de filtre qui représente la probabilité de capture d'une particule par unité de profondeur de lit granulaire.
En combinant les relations 78 et 79, le taux de filtration peut alors s'écrire de la façon suivante pour obtenir une équation de cinétique de colmatage :

$$\frac{\partial \omega}{\partial \theta} = \lambda U C \qquad 80$$

Par définition le coefficient de filtre varie avec le colmatage et a été exprimé par :

$$\left.\begin{array}{c} \lambda = \lambda_0 F(\omega) \\ F(0) = 1 \end{array}\right\} \qquad 81$$

Avec l'indice 0 indiquant un état initial du lit granulaire. La fonction F(ω) est une fonction permettant de prendre en compte le changement d'aptitude du lit granulaire à collecter des particules au fur et à mesure du colmatage.
Selon les conditions de filtration, il peut exister trois types de comportement du filtre vis-à-vis du colmatage :

- Amélioration de l'efficacité, F(ω) est une fonction croissante de ω
  Exemple : $F(\omega)=1+a\omega$, $a>0$

- Diminution de l'efficacité, F(ω) est une fonction décroissante de ω
  Exemple : $F(\omega)=1-a\omega$, $a>0$
- Comportement mixte, amélioration puis diminution de l'efficacité
  Exemple : $F(\omega)= (1+b\omega) - (a\omega^2/(\epsilon_0 - \omega))$, a et $b > 0$

Pour compléter le système d'équations différentielles composé des relations 78 et 80, Herzig et al. (1970) ont développé, à partir de l'équation de cinétique de colmatage, une relation de profil de colmatage :

$$\frac{\partial \omega}{\partial z} = -\lambda\omega \qquad 82$$

Grâce aux équations 80 et 82, ils ont également établi une relation permettant la détermination d'un profil de concentration à partir de celui de dépôt, ou inversement.

Il faut toutefois impérativement connaître C_e et ω_e, la concentration et le dépôt spécifique à l'entrée du lit granulaire :

$$\frac{1}{\omega}\frac{\partial \omega}{\partial z} = \frac{1}{C}\frac{\partial C}{\partial z} \rightarrow \frac{C(z)}{C_e} = \frac{\omega(z)}{\omega_e} \qquad 83$$

Cette relation n'est valable que si C et ω sont évalués à la même profondeur et lorsque C, C_e, ω et ω_e sont déterminés au même temps θ. Le raisonnement présenté ci-dessus fournit donc en théorie l'évolution temporelle de ω(z) et C(z). Cela permet alors de connaitre la fraction de particules retenue par un lit granulaire de profondeur z_{LG} et donc l'efficacité de ce dernier au cours du temps. Pour plus d'informations sur la résolution de ces équations, une méthode complète est décrite dans la littérature (Herzig, Leclerc et Le Goff 1970).

D'après ce raisonnement, le développement phénoménologique d'un modèle d'évolution de l'efficacité de collecte au cours du colmatage revient à déterminer empiriquement la fonction F(ω) pour des conditions expérimentales données. Pour cela, les auteurs utilisant cette méthode assignent à F(ω) une forme prédéfinie selon le comportement du filtre durant le colmatage (cf. exemple ci-dessus) puis en ajustent les coefficients pour représenter au mieux les données expérimentales. Des revues des expressions de F(ω) pour différentes expériences de filtration d'hydrosols sont disponibles dans la littérature (Herzig, Leclerc, et Le Goff 1970; Tien et Ramarao 2011).

Similairement à la détermination de l'efficacité de collecte et du profil de dépôt, l'évolution de la perte de charge à un moment donné du colmatage peut être décrite par une fonction G(ω). Cette fonction représente à débit constant le rapport entre le gradient de pression instantané au travers du filtre et sa valeur initiale. En se basant en régime laminaire sur la loi de Darcy (équation 54), G(ω) peut s'écrire comme le rapport de la perméabilité initiale et instantanée du milieu poreux :

$$\frac{\left(\frac{\partial P}{\partial z}\right)}{\left(\frac{\partial P}{\partial z}\right)_0} = \frac{K_0}{K(\omega)} = G(\omega) \qquad 84$$

La perte de charge est ensuite obtenue par intégration :

$$\Delta P = \Delta P_0 \int_0^1 G(\omega) d\left(\frac{z}{z_{LG}}\right) \qquad 85$$

Cette relation permet ainsi de calculer la perte de charge pour une profondeur et un temps donnés. Cette démarche n'est toutefois applicable qu'à condition d'avoir obtenu la variation temporelle et spatiale (selon la profondeur z) de la quantité de particules déposée.

La méthode de détermination de G(ω) est basée sur le même principe que celle de F(ω). Les coefficients de la forme supposée de G(ω) sont obtenus par ajustement par rapport à des données expérimentales. Les ouvrages cités précédemment regroupant une revue des différentes expressions de F(ω) contiennent également une liste des différentes expressions de G(ω) pour des hydrosols.

Bien que physiquement juste, l'application directe de cette méthode n'est pas prédictive et les diverses fonctions F(ω) et G(ω) obtenues dans des conditions expérimentales données ne sont pas extrapolables à d'autres cas. En effet, si la forme de ces fonctions peut être commune à plusieurs configurations, cela ne semble pas être le cas de leurs coefficients au regard des comparaisons disponibles dans la littérature (Tien et Ramarao 2011). Ces divergences d'une configuration à une autre sont principalement liées au fait que F(ω) et G(ω) sont considérées comme dépendantes du temps mais pas de la répartition du dépôt dans la profondeur qui influence directement l'évolution de la perte de charge et de l'efficacité. En d'autres mots, le coefficient de filtre ne peut pas être considéré comme constant sur toute la profondeur du lit granulaire pour un temps de filtration donné. L'hypothèse d'un dépôt homogène (i.e., d'un coefficient de filtre invariant selon z) ne peut être considérée comme valable qu'aux premiers instants du colmatage ou alors sur une faible profondeur. Dans le but de tenir compte de la répartition du dépôt dans le lit granulaire, il a été nécessaire d'en utiliser une représentation discrétisée en éléments unitaires (EU) (A. Payatakes 1973; Tien et Payatakes 1979). Avec cette représentation, un lit granulaire est considéré comme un découpage en un nombre N_{EU} de couches en série de profondeur z_{EU} appelées éléments unitaires. Chaque EU contient un certain nombre de collecteurs qui peuvent être représentés comme pour les modèles d'état initial par des capillaires, des sphères ou des tubes à étranglement. La Figure V-5 montre une représentation schématique du concept d'élément unitaire.

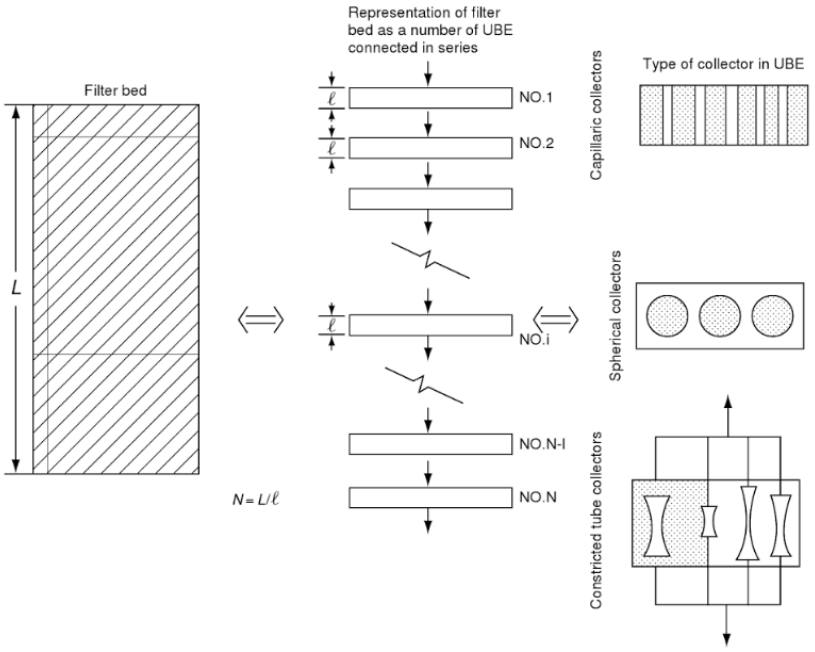


Figure V-5 Représentation schématique d'un lit granulaire par le concept d'éléments unitaires et des différents modèles de collecteurs (Tien et Ramarao 2011).

La profondeur d'un EU est donnée par la relation suivante (Tien et Ramarao 2011) :

$$z_{EU} = \left[\frac{\pi}{6(1-\epsilon_{LG})}\right]^{\frac{1}{3}} * d_c \qquad 86$$

D'après cette relation la valeur z_{EU} est égale au diamètre d'un collecteur dans le cas d'un empilement cubique de sphères identiques, de porosité 47,6%. La profondeur d'un EU est en revanche légèrement inférieure à celle d'un collecteur pour des porosités plus faibles. Cela permet de tenir compte de l'enchevêtrement des collecteurs comme dans le cas des lits granulaires qui sont la plupart du temps des empilements compacts de sphères. Dans ce cas, la porosité vaut environ 37% ce qui correspond à $z_{EU} = 0{,}94 \times d_c$.

La représentation en EU peut être reliée aux équations macroscopiques décrivant la filtration par lit granulaire décrites précédemment. Dans le cas d'un lit vierge, on a vu que le coefficient de filtre était invariant selon la profondeur du lit granulaire et donc identique pour un lit granulaire considéré dans son ensemble et pour un EU. A partir de cette hypothèse, l'intégration de l'équation 79 entre z = 0 et $z = z_{LG}$ permet d'obtenir à θ = 0 :

$$\lambda_0 = \frac{1}{z_{LG}} \ln\left(\frac{1}{1-E_{LG}}\right) = \frac{1}{z_{EU}} \ln\left(\frac{1}{1-E_{EU}}\right) \qquad 87$$

En considérant que la profondeur d'un EU est assez faible pour que le dépôt y soit homogène et donc que le coefficient de filtre est constant à tout moment du colmatage, on peut réécrire l'équation 87 pour θ > 0 :

$$\lambda_{EU} = \frac{1}{z_{EU}} \ln\left(\frac{1}{1-E_{EU}}\right) \qquad 88$$

En combinant la relation 48 avec les relations 87 ou 88, on peut alors relier le coefficient de filtre à l'efficacité unitaire de collecte :

$$\lambda_0 = \frac{3}{2}\,\frac{1-\epsilon_{LG}}{d_c}\,\eta_0 \qquad 89$$

$$\lambda_{EU} = \frac{3}{2}\,\frac{1-\epsilon_{LG}}{d_c}\,\eta_{EU} \qquad 90$$

Avec η_{EU} l'efficacité unitaire de collecte au sein d'un EU donné. D'après les relations 81, 89 et 90, on obtient alors une expression de F(ω) pour un EU n'étant fonction que de l'efficacité unitaire de collecte :

$$F_{EU}(\omega) = \frac{\lambda_{EU}}{\lambda_0} = \frac{\eta_{EU}}{\eta_0} \qquad 91$$

η_0 étant calculable par les différents modèles présentés en début de chapitre, il est possible connaissant expérimentalement l'évolution de l'efficacité d'un EU au cours du colmatage de calculer η_{EU} et donc les coefficients de $F_{EU}(\omega)$. Cette fonction étant théoriquement invariante dans un EU, elle peut être utilisée pour calculer l'évolution du dépôt et de l'efficacité au cours du colmatage de chaque EU successif et donc dans tout le lit granulaire. Afin de rendre prédictive la modélisation phénoménologique du colmatage de lits granulaires, trois études ont principalement été menées en utilisant la représentation en éléments unitaires. Des corrélations plus générales tenant compte de la répartition non-homogène du dépôt dans la profondeur ont ainsi été établies pour calculer les coefficients de F(ω) et G(ω) en fonction des conditions expérimentales.

De plus, ces études sont plus proches de notre sujet que les précédentes car elles concernent la filtration d'aérosols microniques (diamètre des particules supérieur à 1 µm).
Dans la première de ces études, Walata et al. (1986) ont supposé que F(ω) et G(ω) devaient avoir la même forme ne différant ainsi que par leurs coefficients. Les auteurs ont tout d'abord développé une méthode semi-empirique pour calculer à partir de données expérimentales l'évolution de l'efficacité d'une couche de lit granulaire assez mince pour que les coefficients des fonctions F(ω) et G(ω) puissent être considérés comme invariants. Cette méthode consiste à réaliser un ensemble d'expériences dont les conditions ne varient que par la profondeur du lit granulaire utilisé. A partir des mesures d'évolution de la concentration en sortie de filtre (C_s), celle de l'efficacité d'un EU a été calculée pour chaque expérience en supposant un dépôt homogène sur toute la profondeur du lit.

$$E_{EU} = \frac{z_{EU}}{z_{LG}} \ln\left(\frac{C_e}{C_s}\right) \qquad 92$$

La connaissance d'E_{EU} au cours du colmatage permet d'obtenir avec les équations 88, 90 et 91 l'allure de F(ω) et donc par ajustement la valeur de ces coefficients pour les différentes profondeurs de lits granulaires. L'uniformité du dépôt étant réaliste à de faibles profondeurs, les valeurs correctes de chaque coefficient ont été considérées comme étant celles correspondant par extrapolation à une profondeur proche de 0. La même démarche a été appliquée pour trouver les coefficients de G(ω). En reproduisant cette procédure pour un grand nombre de données, il serait par conséquent possible d'étudier la dépendance aux différents paramètres opératoires des coefficients de F(ω) et G(ω).
Ce travail a été initié par Takahashi et al. (1986) qui ont appliqué cette méthode en faisant varier le diamètre des collecteurs et la vitesse superficielle. Les corrélations obtenues pour les coefficients de F(ω) et G(ω) ont été exprimées en fonction des nombres adimensionnels pertinents vis-à-vis de particules microniques : le nombre de Stokes (caractéristique de l'impaction inertielle) et le paramètre d'interception. Cette étude a été ensuite poursuivie par Jung et Tien (1990) qui ont calculé une profondeur limite au-delà de laquelle l'hypothèse d'un dépôt uniforme dans la profondeur n'est plus valable. Dans leurs configurations, cette profondeur limite est égale à 10 fois la profondeur d'un EU. La détermination de cette profondeur leur a permis de s'affranchir de la démarche d'extrapolation qui nécessite un grand nombre d'expériences.
Jung et Tien ont ainsi pu proposer des corrélations pour calculer les coefficients des fonctions F(ω) et G(ω) mises sous la forme : $1 + \alpha'\omega^{\alpha''}$. Ces corrélations étant valides pour des paramètres d'interception (R) allant de $1{,}72.10^{-3}$ à 8.10^{-3}, elles ne sont pas applicables dans notre cas. En effet dans cette étude la valeur maximale de R ne dépasse jamais 2.10^{-5} (diamètre des particules inférieures à 100 nm et diamètre des collecteurs supérieurs à 0,5 mm).
Bien que la modélisation phénoménologique du colmatage puisse déboucher sur des corrélations empiriques permettant de la rendre prédictive dans certains cas, ce type de modèle présente l'inconvénient de ne pas fournir d'aperçu des phénomènes et mécanismes mis en œuvre à l'échelle du collecteur lors du dépôt des particules.

V.1.3.2 Modélisation rationnelle

En parallèle de la modélisation macroscopique, une approche dite rationnelle peut-être employée pour modéliser le colmatage. Ce type d'approche tient directement compte de l'influence des changements de structure interne liés au dépôt sur la perte de charge et l'efficacité. Ainsi, les modèles rationnels consistent dans la majorité des cas à modifier des paramètres tels que la porosité ou le diamètre des collecteurs en supposant une géométrie particulière du dépôt en surface des collecteurs ou dans les pores.

- **Modèle d'O'melia et Ali (1978)**

Le premier modèle de ce type a été développé par O'Melia et Ali (1978) dans le but de prédire l'évolution des performances d'un lit granulaire durant la phase où l'efficacité de filtration d'hydrosols est améliorée par le colmatage. Pour développer ce modèle, les auteurs ont utilisé trois diamètres de particules (0,1, 1 et 7,6 µm) et des collecteurs de 0,38 mm de diamètre. Le principe de ce modèle est de considérer que les particules déposées dans le lit granulaire agissent comme des collecteurs additionnels améliorant ainsi l'efficacité. En supposant, une efficacité unitaire de collecte pour une particule déposée et en connaissant le nombre (N_p) grâce à l'efficacité unitaire initiale, cette dernière peut être mise à jour en sommant la contribution du collecteur vierge et du nombre de particules déposées. A partir d'un collecteur modifié par les particules qui lui sont attachées, les auteurs ont estimé la perte de charge correspondant à un état de colmatage donné en modifiant la surface spécifique des collecteurs ($a_c = 6/d_c$ pour un collecteur sphérique) dans l'expression de la loi de Kozeny-Carman. Cette modification de surface spécifique est définie dans cette étude par :

$$a_c = \frac{\text{Surface d'un collecteur vierge} + N_p \text{ x Surface d'une particule sphérique}}{\text{Volume d'un collecteur vierge} + N_p \text{ x Volume d'une particule sphérique}} \qquad 93$$

On remarque par conséquent que la porosité du dépôt n'est pas prise en compte dans ce calcul. En termes de comparaison avec des résultats expérimentaux, ce modèle a permis de modéliser avec une assez bonne précision l'évolution de l'efficacité. Bien que la description des particules comme des collecteurs additionnels semble réaliste, ce modèle n'est que faiblement prédictif. En effet, pour calculer l'efficacité de collecte il est nécessaire d'estimer l'efficacité de collecte d'une particule seule ainsi que des facteurs d'adhésion des particules entre elles ou sur la surface des collecteurs. Concernant la modélisation de la perte de charge, l'accord peut également être satisfaisant mais dans une moindre de mesure que pour l'efficacité de collecte. De plus, les auteurs ont ajouté un paramètre d'ajustement arbitraire dans la loi de Kozeny-Carman afin de se rapprocher des résultats expérimentaux. Enfin, il a pu être remarqué dans la littérature que les valeurs de ces différents paramètres sont très peu transposables d'une configuration à une autre. Néanmoins, il existe dans la littérature un certain nombre d'études ayant eu pour but de développer des corrélations pour prédire ces paramètres d'ajustement. Une revue de ces corrélations est proposée par Tien et Ramarao (2011).

- **Modèle de Tien et al. (1979)**

Afin de modéliser de façon plus réaliste le colmatage, et surtout l'évolution de la perte de charge, Tien et al. (1979) ont développé un modèle hybride en divisant le procédé en deux phases. Ce modèle est à la base destiné à la filtration d'hydrosols composé de particules de 6 µm de diamètre. Pour tenir compte de la répartition non-uniforme du dépôt dans la profondeur du lit granulaire, Tien et al. ont utilisé la représentation en éléments unitaires décrites précédemment.

Durant la première phase, le dépôt forme une couche uniforme imperméable autour de la surface des collecteurs. Ceci se traduit si l'on néglige les points de contact par une augmentation du diamètre des collecteurs et par une réduction de la porosité du lit granulaire. Pour décrire cette phase en termes d'efficacité unitaire de collecte, Tien et al. ont proposé d'utiliser le modèle cellulaire de Happel en modifiant la cellule conformément aux changements de structure. Ils ont ainsi décidé de conserver la dimension extérieure de la cellule constante (i.e., le diamètre de l'enveloppe de fluide) et de faire uniquement varier le diamètre du collecteur. Ce nouveau diamètre est obtenu à partir de l'équation 52 dans laquelle la porosité de l'EU est réduite du volume occupé par le dépôt en tenant compte de sa porosité. Si le diamètre de l'enveloppe de fluide ne change pas alors le ratio entre les diamètres instantané et initial d'un collecteur s'écrit :

$$\frac{\mathrm{d_c}}{\mathrm{d_{c,0}}} = \left(\frac{1-\epsilon_{\mathrm{LG}}}{1-\epsilon_{\mathrm{LG,0}}}\right)^{\frac{1}{3}} \qquad 94$$

Avec

$$\epsilon_{\mathrm{LG}} = \epsilon_{\mathrm{LG,0}} - \frac{\omega}{1-\epsilon_{\mathrm{d}}} \qquad 95$$

Connaissant le nouveau diamètre des collecteurs et la nouvelle porosité, l'efficacité unitaire de collecte au sein d'un EU, η_{EU}, peut être calculée avec le modèle de Happel pour toute quantité de dépôt ω. L'efficacité unitaire initiale étant connue de la même manière, la relation 91 peut être appliquée pour accéder à $F_{EU}(\omega)$ durant la première phase. Pour le calcul de la perte de charge, la fonction $G_{EU}(\omega)$ est simplement obtenue par le rapport entre les perméabilités instantanée et initiale de la loi de Kozeny-Carman en tenant compte des changements de diamètre et de porosité.

A partir d'une certaine quantité de dépôt, la deuxième phase commence. Durant cette phase le dépôt n'est plus considéré comme une couche uniforme autour des collecteurs mais comme une obstruction des pores. Les collecteurs sont ainsi représentés par des tubes à étranglement dont le nombre et les dimensions sont connus (Tien et Payatakes 1979). En connaissant la quantité de dépôt nécessaire à la complète obstruction d'un étranglement à partir de son état de fermeture à la transition entre les deux phases, il est possible de connaitre pour un ω donné le nombre de pores restant libres pour l'écoulement. Si le débit est considéré comme constant, il est alors possible de connaitre l'augmentation de vitesse interstitielle au travers d'un EU. La fonction $F_{EU}(\omega)$ est à nouveau calculée grâce au modèle de Happel mais pour des vitesses d'écoulement de plus en plus grandes avec l'augmentation de ω et en gardant le diamètre des collecteurs égal à celui atteint à la transition entre les deux phases. A la différence de la première phase, la fonction $G_{EU}(\omega)$ est obtenue en utilisant la totalité de la loi de Kozeny-Carman (équations 70-72) et non un rapport des seules perméabilités. Ceci est nécessaire car le paramètre variant avec le dépôt dans la seconde phase (i.e., la vitesse d'écoulement) n'influe pas sur la perméabilité. $F_{EU}(\omega)$ et $G_{EU}(\omega)$ étant connues pour les deux phases et invariantes avec la profondeur, les équations phénoménologiques peuvent être résolues pour prédire le comportement d'un lit entier.

Ce modèle est intéressant de par sa conception hybride en deux phases qui pourrait être transposable au cas de la filtration des aérosols où d'après les données du chapitre 2, un découpage en phases semble possible. Même si l'accord n'est pas très bon d'après la littérature (Tien, Turian, et Pendse 1979a), ce modèle permet de bien rendre compte qualitativement des phénomènes et donne tout de même un ordre de grandeur. Néanmoins, il n'est pas prédictif du fait de paramètres très difficilement accessibles comme la quantité de dépôt nécessaire à l'obstruction d'un étranglement ou encore celle marquant la transition entre les deux phases.

- **Modèles basés sur la modification des modèles cellulaires d'efficacité unitaire initiale**

Parmi les modèles rationnels, une autre approche consiste à modifier les modèles cellulaires d'efficacité unitaire de collecte initiale. Le modèle cellulaire le plus utilisé dans la littérature pour prédire le comportement des lits granulaires durant le colmatage est celui de Happel.
Choo et Tien (1995a) ont développé un modèle prédisant l'évolution de l'efficacité de collecte d'un lit granulaire lors de la filtration d'hydrosols non-Brownien n'étant soumis qu'au mécanisme d'interception. Pour tenir compte de l'effet des particules sur la cellule initiale de Happel, les auteurs ont ajouté à l'intérieur de cette dernière une troisième zone perméable représentant la couche de dépôt autour d'un collecteur (Figure V-6)

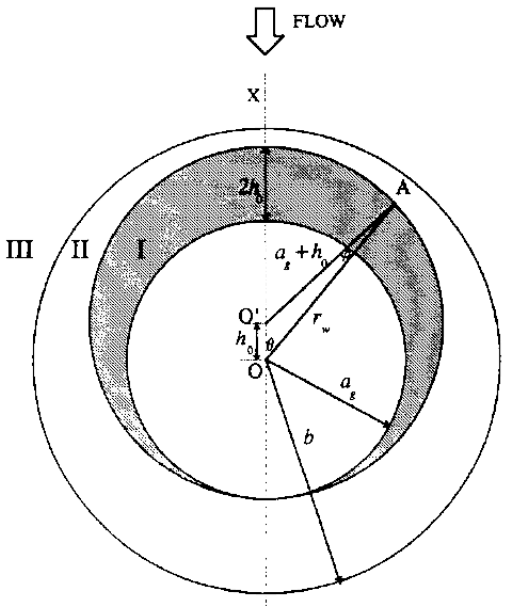


Figure V-6 Représentation d'une cellule de Happel modifiée par une enveloppe de dépôt (zone grisée) autour d'un collecteur (Choo et Tien 1995a)

La géométrie de l'enveloppe a été définie par les auteurs sur la base d'observations qualitatives lors d'études antérieures montrant un dépôt par interception majoritairement localisé sur la face du collecteur directement exposée à l'écoulement. La géométrie de la cellule étant ainsi connue, Choo et Tien ont calculé l'écoulement dans cette dernière pour une quantité de dépôt donnée. Dans le dépôt (zone I sur la Figure V-6) et à l'extérieur de la cellule (zone III), l'écoulement est obtenu par la loi de Stokes-Brinkman. Dans l'enveloppe de fluide (zone II), l'écoulement est considéré comme rampant et est donc décrit par l'équation de Stokes.
La connaissance de ce champ d'écoulement permet de calculer la trajectoire limite (Figure V-3) dans la cellule contenant un dépôt et ainsi d'accéder à l'efficacité unitaire de collecte instantanée. En procédant de la sorte pour différentes quantités de dépôt, Choo et Tien ont développé sur la base de ces résultats numériques une corrélation donnant F(ω) en fonction du paramètre d'interception. Cette corrélation dépend également de la porosité du dépôt et de sa perméabilité qui a été calculée grâce à la relation de Kozeny-Carman. Ce modèle présente des divergences significatives avec les données expérimentales, mais permet malgré tout d'obtenir un accord de tendance intéressant. En effet, à la différence des modèles précédents, il n'est développé qu'à partir de considérations théoriques, n'utilise aucun paramètre d'ajustement et peut par conséquent être considéré comme prédictif.

Dans le même esprit, Fichman et al. (1988) ont développé un modèle d'évolution de l'efficacité de collecte au cours du colmatage par des aérosols microniques (i.e., collection dominée par l'impaction inertielle et l'interception). L'une des principales différences avec le modèle précédent est que la couche de dépôt forme une enveloppe sphérique uniforme autour du collecteur. L'évolution de l'épaisseur de cette couche en fonction de la quantité déposée est obtenue sur la base du calcul de la probabilité de collecte d'une particule par un élément de surface du collecteur. Dès lors que cet élément de la surface contient une particule, l'évolution de l'épaisseur de sa couche de dépôt est déterminée à partir du calcul de la probabilité de collecte d'une particule par une unique particule déjà déposée. Par la suite, lorsque l'élément de surface contient un groupement de particules (i.e., plus de 2 particules), la croissance de l'épaisseur de la couche de dépôt est obtenue par le même principe en considérant la probabilité de collecte d'une particule par un groupement de particules déjà déposé. Le calcul de l'écoulement se fait en résolvant les mêmes équations dans les 3 zones de la cellule que dans le modèle de Choo et Tien. La perméabilité et la porosité du dépôt doivent par ailleurs toujours être estimées expérimentalement ou sur la base d'une relation théorique comme celle de Kozeny-Carman. Ce modèle a par la suite été étendu au cas d'aérosols polydispersés (Gutfinger, Pnueli, et Fichman 1988) et validé pour une large plage de conditions expérimentales dans le domaine d'impaction inertielle et d'interception.

- **Algorithmes de colmatages de lits granulaires**

Les modèles présentés jusqu'ici se focalisent sur la détermination rationnelle de l'évolution de l'efficacité unitaire de collecte (i.e., du coefficient de filtre) en fonction de la quantité de dépôt pour ensuite résoudre les équations macroscopiques. D'autres modèles prenant la forme d'algorithmes prédisent directement le comportement des lits granulaires entiers. Ces modèles sont basés la plupart du temps sur la discrétisation de la profondeur d'une structure modèle de lit granulaire. Ils consistent à développer un algorithme actualisant à intervalle de temps régulier les performances (efficacité et perte de charge) de chaque discrétisation en fonction de la quantité de particules précédemment déposée. Dans ce type de modèle, l'évolution des performances est souvent calculée sur la base de considérations géométriques concernant le type de collecteurs utilisés et la répartition du dépôt sur ces derniers. Ces modèles n'utilisant pas le calcul de l'écoulement et des trajectoires des particules, ils sont donc à différencier des simulations de mécanique des fluides numérique présentées dans le chapitre 3.

Choo et Tien (1995b) ont développé un modèle de ce type appliqué à la filtration d'hydrosols microniques identiques à ceux utilisés dans leur première étude présentée précédemment (Choo et Tien 1995a). Dans ce deuxième modèle, la discrétisation du lit granulaire a été effectuée en utilisant la représentation en éléments unitaires. Les collecteurs composant les EU sont de type capillaire. La profondeur d'un EU étant connue, les auteurs ont calculé le diamètre des capillaires de façon à ce qu'ils aient le même volume qu'un tube à étranglement représentatif du lit granulaire étudié.

Afin de connaitre l'efficacité instantanée d'un capillaire, Choo et Tien ont développé une relation de conversion entre cette dernière et l'efficacité obtenue par un modèle cellulaire. L'efficacité instantanée d'une cellule est calculée à partir de la corrélation développée numériquement par Choo et Tien (1995a). Dans ce modèle, le colmatage d'un EU est divisé en trois phases. La première correspond à la formation d'une monocouche uniforme de particules sur les parois des capillaires. La perte de charge durant cette phase est calculée à partir de la force de trainée exercée sur une particule déposée. Après la formation de cette couche, le dépôt est réparti pour un capillaire donné d'un EU selon un profil, arbitrairement choisi, décroissant avec la profondeur. Ce capillaire est par conséquent aussi discrétisé dans sa profondeur. La perte de charge est ensuite calculée dans chaque discrétisation du capillaire par la loi de Hagen-Poiseuille dans la section libre et par loi de Stokes-Brinkman dans le dépôt.

La troisième phase commence lorsque le capillaire est obstrué et qu'un gâteau se forme à son entrée. Ce type de modèle fournit une étude plus complète de la dynamique de la filtration par lit granulaire. Le modèle de Choo et Tien parvient dans un certain nombre de situations à être en bon accord avec les expériences (Exemple de conditions expérimentales : diamètre de collecteurs : 505 µm, diamètre de particules : 26 µm et vitesse superficielle 0,1 cm/s). Néanmoins, ses capacités prédictives sont limitées du fait de l'utilisation d'un paramètre d'ajustement influençant le profil de dépôt dans la profondeur d'un capillaire.

L'un des défauts de la plupart des modèles de colmatage est la trop grande idéalisation de la structure des lits granulaires. En effet, d'après le concept d'élément unitaire développé par Payatakes (1973), les connexions latérales entre collecteurs au sein d'un même EU sont négligées. Pour pallier ce problème, Vigneswaran et Tien (1987) ont développé un modèle simulant de façon analogue le rétrécissement, sous l'effet du dépôt, de capillaires aléatoirement interconnectés. Même si les résultats obtenus par ce modèle sont qualitativement cohérents, ce modèle a été surtout développé afin de montrer la faisabilité de la prise en compte des connexions latérales entre collecteurs et manque ainsi de comparaisons avec des données expérimentales.

- **Modèles de colmatage basés sur la simulation des trajectoires des particules**

Du fait de capacités de calcul de plus en plus importantes, certains auteurs ont tenté une approche basée directement sur le calcul de la trajectoire de chaque particule prise individuellement. Cette méthode permet théoriquement de tenir compte au cours du temps de l'influence de la localisation du dépôt sur l'écoulement et la collecte de particules.
L'un des premiers modèles de ce type a été développé par Pendse et Tien (1981) afin de décrire le colmatage de lits granulaires par des aérosols microniques. La géométrie de collecteur utilisée dans cette étude est celle d'un tube à étranglement. Grâce à l'analyse des trajectoires des particules dans le tube, les auteurs ont pu simuler l'évolution de la morphologie du dépôt à l'intérieur du tube ainsi que celle de son l'efficacité de collecte. La connaissance de cette efficacité unitaire de collecte au cours du temps a permis d'obtenir l'évolution du coefficient de filtre en fonction de la quantité déposée (i.e., $F(\omega)$) et de modéliser le comportement du lit granulaire entier par la résolution des équations macroscopiques du colmatage. Afin de limiter le temps de calcul, plusieurs approximations ont néanmoins été réalisées. Tout d'abord l'écoulement n'a pas été recalculé en tenant compte des particules déposées ce qui induit une erreur sur la morphologie du dépôt du fait de la modification des lignes de courant par ce dernier. Par ailleurs ces simulations ont été menées dans des cas limites où la trajectoire des particules est simple à déterminer, i.e., extrêmement forte et faible inertie. Dans le premier cas, les particules entrant dans le tube ont des trajectoires rectilignes et dans le second elles suivent les lignes de courant. La taille des particules de l'ordre du micromètre ne nécessitant pas la prise en compte de la diffusion brownienne, ces simulations correspondent à des cas où un unique mécanisme de collecte est significatif : l'impaction inertielle dans le premier et la pure interception dans le second. Les résultats d'efficacité obtenus grâce à ces simulations ont été comparés avec des données expérimentales dont les conditions impliquent une action combinée des mécanismes d'impaction inertielle et d'interception. Cette comparaison montre un bon accord de tendance et permet de remarquer que les données expérimentales sont encadrées par les simulations correspondant à ces deux mécanismes pris individuellement. Ceci semble être cohérent avec l'hypothèse selon laquelle une représentation réaliste de ces expériences pourrait être obtenue par une combinaison des résultats de simulations des cas limites précédemment décrits.
Ce principe de combinaison de deux cas limites pour décrire le comportement d'un lit granulaire a été appliqué d'une autre manière par Chiang et Tien (1985) dans le cas d'hydrosols de particules soumises exclusivement à l'interception et suivant donc les lignes de courant.

Cette étude utilise également les tubes à étranglement comme géométrie de collecteurs. Les deux situations limites simulées sont : (1) un dépôt formant une couche uniforme à la surface du tube et (2) des particules déposées individuellement pour qu'elles puissent être considérées comme des collecteurs additionnels. Dans ce deuxième cas, Chiang et Tien n'ont pas supposé un dépôt des particules au premier contact avec le collecteur ou celles déjà collectées et ont par conséquent utilisé la notion de probabilité d'adhésion. Sur la base d'une combinaison de ces simulations et de résultats expérimentaux, Chiang et Tien ont développé une corrélation reliant la fonction F(ω) au paramètre d'interception. Cette corrélation n'utilisant aucun paramètre d'ajustement a permis de modéliser avec une précision satisfaisante certains résultats d'efficacité de collecte issus de sources indépendantes.
Plus récemment Burganos et al. (2001) et Skouras et al. (2004) ont développé un simulateur tridimensionnel pour prédire le colmatage de lits granulaires par des hydrosols microniques n'étant ainsi pas influencés par la diffusion brownienne. Ce simulateur, se situant au carrefour de la modélisation rationnelle et de la mécanique des fluides numérique, assimile le lit granulaire à un réseau de tubes à étranglement reliés entre eux dans les trois dimensions de l'espace. Les dimensions de ce réseau sont les mêmes que celles du lit granulaire simulé, notamment sa profondeur. L'écoulement et les trajectoires des particules sont calculés à intervalles de temps régulier pour tenir compte des changements de géométrie liés au dépôt et fournir l'évolution de l'efficacité de collecte et de la perte de charge. Ce simulateur permet également de prendre en compte des phénomènes avancés de réentrainement et de débouchage des pores grâce à la comparaison de la contrainte exercée par le fluide sur le dépôt avec une valeur critique fixée par l'utilisateur. Ce type d'approches présente un grand intérêt car elles permettent à l'instar de la mécanique des fluides numérique d'obtenir des informations sur des phénomènes locaux difficilement accessibles expérimentalement. On regrettera néanmoins qu'aucune comparaison avec des données expérimentales n'ait été réalisée concernant la variation d'efficacité et de perte de charge.

A la lumière de cette étude bibliographique, il est possible de constater que, depuis plus de 40 ans, un grand nombre de modèles ont été développé afin de prédire l'évolution des performances de lits granulaires en cours de colmatage. Dans la plupart des cas, ces modèles ont été établis pour des cas de filtration d'hydrosols non-browniens. Par ailleurs, peu de ces modèles sont réellement prédictifs car la plupart font appel à des paramètres d'ajustement dont la détermination n'est pas toujours possible même expérimentalement. Il ressort donc de cet état de l'art qu'il existe une réelle absence de modélisation du colmatage de lit granulaire par des aérosols de taille nanométrique collectés préférentiellement par diffusion brownienne.

V.2 Développement d'un modèle de colmatage de lits granulaires par des particules ultrafines

D'après l'étude expérimentale du colmatage de lits granulaires et d'une nappe de collecteurs en arrangement cubique présentée aux chapitres 2 et 4, respectivement, il est apparu que la filtration par lit granulaire pouvait se décomposer en trois phases (A, B, C). Parmi ces trois phases, les deux premières (A et B) décrivent une étape plus globale d'amélioration des performances en termes d'efficacité du fait de l'accumulation du dépôt et menant par ailleurs à une augmentation de la perte de charge. Cette étape s'étend jusqu'à l'obtention d'un lit granulaire de très haute efficacité (proche de 100%) et laisse place à une autre phase de seule augmentation de la perte de charge, l'efficacité demeurant à son maximum. Dans cette étude, un modèle a été développé afin de prédire l'évolution de l'efficacité et de la perte de charge durant la période d'amélioration des performances (phases A et B).

L'hypothèse d'un dépôt de particules ultrafines par diffusion brownienne formant une enveloppe sphérique uniforme autour des collecteurs a été très souvent utilisée pour le développement des modèles de colmatage décrits précédemment (Tien, Turian, et Pendse 1979b; Fichman, Gutfinger, et Pnueli 1988). Cependant, d'après l'étude de la morphologie des dépôts de nanoparticules en surface des collecteurs réalisée au chapitre 4, il a été constaté que le dépôt présentait une forme elliptique plutôt que sphérique du fait de l'influence des points de contact. Cette forme elliptique étant uniforme sur 360° autour des collecteurs et l'apogée de l'ellipse restant constamment très faiblement supérieure à son périgée, la sphéricité du collecteur et de son dépôt peut être tout de même considérée comme conservée au cours du colmatage. Ainsi, ce modèle a pu être également développé sur la base d'un dépôt sphérique uniforme. Grâce à cette hypothèse, il a été choisi de modéliser les phases A et B au moyen de diamètres de collecteurs équivalents dépendant de la masse de particules collectées.

V.2.1 Développements des expressions de diamètres de collecteur équivalent en fonction de la masse déposée.

Phase A : Durant la phase A, il a pu être observé expérimentalement que la perte de charge et l'efficacité présentaient une très faible évolution en fonction de la masse collectée. Puisque le dépôt est considéré comme sphérique et uniforme en surface des collecteurs, il a été supposé que le diamètre des collecteurs augmentait légèrement sans toutefois obstruer significativement les pores. Cette approche est identique à celle utilisée par Tien et al. (1979) et l'augmentation du diamètre des collecteurs devrait par conséquent être rigoureusement modélisée par l'équation 94, i.e., en tenant compte de la variation de porosité associée au dépôt. Cette variation de porosité étant négligeable dans le cas de particules nanostructurées, il a été choisi de ne tenir compte que d'une augmentation du diamètre des collecteurs durant la phase A. Le diamètre équivalent de collecteur utilisé pour décrire cette phase a donc été choisi comme celui de la sphère ayant le même volume qu'un collecteur et sa couche de dépôt. D'après cette définition, la couche de dépôt agit comme une coque imperméable (Figure V-7). Pour déterminer ce diamètre équivalent en volume, le volume instantané de la couche de dépôt formée autour d'un collecteur durant la phase A doit être calculé par :

$$V_{d,c,A} = \frac{m_{p,c,A}}{\rho_p(1-\epsilon_d)} \qquad 96$$

Où $m_{p,c,A}$ est la masse instantanée de particules collectée par collecteur durant la phase A, ρ_p est la masse volumique du matériau des particules et ε_d est la porosité du dépôt (équation 77).

Connaissant $V_{d,c,A}$, il est possible de calculer le volume total instantané d'un collecteur et de son dépôt :

$$V_{c,A} = \frac{\pi d_c^3}{6} + \frac{m_{p,c,A}}{\rho_p(1-\epsilon_d)} \qquad 97$$

Le diamètre instantané du collecteur vierge sphérique de volume $V_{c,A}$ peut alors être obtenu par :

$$d_{eq,A} = \left(d_c^3 + \frac{6m_{p,c,A}}{\pi\rho_p(1-\epsilon_d)}\right)^{\frac{1}{3}} \qquad 98$$

Phase B : Durant la phase B, la perte de charge et l'efficacité de collecte augmentent brusquement. L'une des principales caractéristiques des nanoparticules étant leur très importante surface spécifique, cette forte augmentation a été attribuée à celle de la surface spécifique des collecteurs du fait de l'accumulation du dépôt. Simultanément à l'augmentation de la surface spécifique des collecteurs, la surface libre des pores se réduit significativement provoquant une augmentation de la résistance à l'écoulement au travers des pores et donc une augmentation de la fraction du débit passant dans la couche de dépôt autour des collecteurs lors de cette phase. Pour tenir compte de ces effets, un diamètre de collecteur équivalent lié à la surface spécifique a été choisi. Ce diamètre a été défini comme celui de la sphère présentant la même surface spécifique qu'un collecteur et sa couche de dépôt. Comme le dépôt est représenté par une couche uniforme d'épaisseur β en surface des collecteurs, une épaisseur critique de cette couche, β*, a été ajouté au modèle comme critère de transition entre les phases A et B (Figure V-7).

Pour calculer ce diamètre équivalent en surface spécifique, la structure géométrique des éléments composant le dépôt doit être connue. D'après l'étude bibliographique réalisée au chapitre précédent sur la morphologie des dépôts, certains auteurs ont supposé une structure dendritique des dépôts de nanoparticules (Thomas et al. 2014; A. C. Payatakes et Gradoń 1980). En s'inspirant de cette théorie, le dépôt par collecteur a été défini comme un ensemble de cylindres de diamètre égal à celui des particules collectées. Dans le cas d'agglomérats (composant par exemple les fumées de métallisation), le diamètre des cylindres est assimilé au diamètre équivalent en volume des agglomérats déposés. La longueur des cylindres est quant à elle assimilée à l'épaisseur instantanée de la couche de particules déposée au-dessus de l'enveloppe imperméable formée durant la phase A (Figure V-7). Avec cette représentation, les dimensions des structures du dépôt améliorant l'efficacité de collecte sont du même ordre de grandeur que celles des agglomérats composant l'aérosol. Cette approche est donc cohérente avec le fait, qu'à cause de leur taille, les agglomérats ne peuvent pas physiquement pénétrer l'espace intra-agglomérat du dépôt. En effet, les agglomérats retenus forment des enchevêtrements de très petites particules primaires ayant une porosité interne qui n'est pas disponible en tant que surface de collecte.

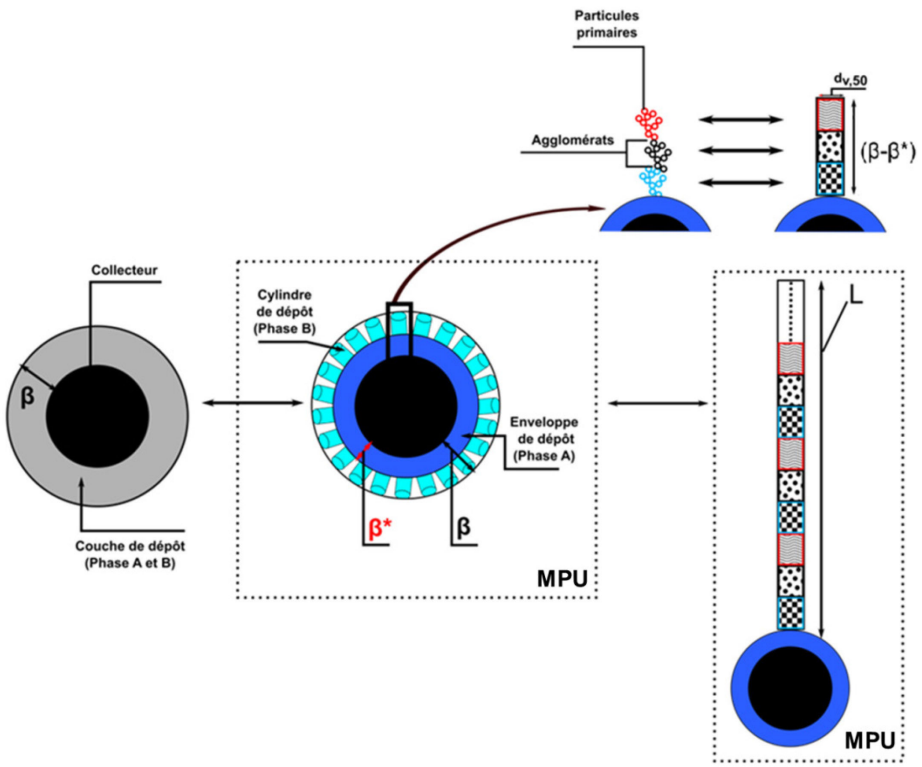


Figure V-7 Représentation schématique d'un dépôt formé en surface d'un collecteur au cours des phases A et B

Pour calculer la surface spécifique d'un collecteur, la surface totale du dépôt doit dans un premier temps être connue. D'après la description du dépôt ci-dessus, sa surface peut être schématiquement calculée comme la somme de la surface des cylindres. Ce calcul requiert ainsi la connaissance du nombre de cylindres et l'épaisseur de la couche de dépôt formée durant la phase B. Il peut cependant être simplifié en supposant que tous les cylindres sont équivalents à un cylindre plus long et de même diamètre contenant toutes les particules déposées depuis le début de la phase B (Figure V-7) – ce cylindre est appelé Long Cylindre Equivalent ou LCE. Le volume instantané du LCE peut être calculé par :

$$V_{LCE} = \frac{m_{p,c,B}}{\rho_p} \qquad 99$$

Avec $m_{p,c,B}$ la masse instantanée de particules collectée par collecteur durant la phase B.
Connaissant le volume du LCE, sa longueur est obtenue par :

$$L = \frac{4\, m_{p,c,B}}{\pi\, d_{v,50}^2\, \rho_p} \qquad 100$$

Avec $d_{v,50}$ le diamètre équivalent en volume médian des agglomérats collectés et L la longueur du LCE.

Le diamètre et la longueur du LCE étant connus, sa surface peut être calculée par :

$$S_{LCE} = \pi d_{v,50} L \qquad 101$$

Le diamètre du LCE étant très faible devant sa longueur, la surface du disque supérieur du LCE a été négligée.
Afin de calculer la surface spécifique de l'ensemble collecteur/dépôt, il est important de rappeler que cette dernière correspond à un rapport entre une surface et son volume.

Comme la couche de dépôt est poreuse, son volume a été défini comme celui d'un collecteur et de son dépôt en tenant compte de la porosité de ce dernier. De par cette définition du volume, la surface spécifique calculée est celle d'un milieu poreux, le collecteur et son dépôt étant ainsi considérés comme un milieu poreux unitaire (MPU). Le volume d'un MPU est donc obtenu en sommant le volume de la couche de dépôt formée pendant la phase B et celui du collecteur équivalent atteint à la fin de la phase A :

$$V_{MPU} = \frac{\pi}{6} d_{eq,A}^3 + \frac{m_{p,c,B}}{\rho_p(1-\epsilon_d)} \qquad 102$$

Comme la surface du collecteur équivalent à la fin de la phase A, $S_{eq,A}$, est connue, la surface spécifique d'un MPU peut être déterminée par l'équation suivante :

$$a_{MPU} = \frac{(S_{eq,A} + S_{LCE})}{V_{MPU}} = \left(\frac{6\pi d_{eq,A}^2 \rho_p (1-\epsilon_d) d_{v,50} + 24(1-\epsilon_d) m_{p,c,B}}{\pi d_{eq,A}^3 \rho_p (1-\epsilon_d) d_{v,50} + 6 d_{v,50} m_{p,c,B}}\right) \qquad 103$$

A partir de l'équation 103, on peut alors obtenir le diamètre du collecteur vierge ayant la même surface spécifique qu'un MPU :

$$d_{eq,B} = \frac{6}{a_{MPU}} = \left(\frac{\pi d_{eq,A}^3 \rho_p (1-\epsilon_d) d_{v,50} + 6 d_{v,50} m_{p,c,B}}{\pi d_{eq,A}^2 \rho_p (1-\epsilon_d) d_{v,50} + 4(1-\epsilon_d) m_{p,c,B}}\right) \qquad 104$$

Ainsi, les expressions des diamètres de collecteurs équivalents pour les phases A et B ont pu être développées en fonction de la masse de particules collectée (équations 98 et 104). Afin de décrire le comportement dynamique des lits granulaires en cours de colmatage, ces diamètres équivalents doivent ensuite être injectés dans des modèles d'efficacité unitaire de collecte et de perte de charge initiale. Les modèles utilisés dans cette étude ont été choisis parmi ceux présentés dans l'état de l'art en début de chapitre.

Choix des modèles d'efficacité unitaire initiale : Il a été mis en évidence dans l'état de l'art que le choix d'un modèle d'efficacité initiale de collecte par diffusion brownienne ou par interception revient dans la majorité des cas à sélectionner un modèle d'écoulement au travers d'un lit granulaire (équations 62 et 69). Le premier critère de choix est la plage de validité en termes de régime d'écoulement. Dans les configurations expérimentales décrites au chapitre 2, le nombre de Reynolds, Re_c, est principalement compris entre 5 et 12 traduisant un régime d'écoulement laminaire. D'après cela, le modèle théorique d'écoulement le plus adapté semble être celui de Neale et Nader (1974) (équation 57) valable jusqu'à un Re_c d'environ 10. Afin de comparer les résultats avec ceux d'un modèle obtenu empiriquement et possédant la même plage de validité, le modèle d'efficacité initiale de Wilson et Geankoplis (1966) a aussi été retenu. Enfin, le modèle statistique d'écoulement de Tam (1969) a également été testé pour analyser les performances d'un modèle utilisé en dehors de sa plage de validité. En effet, ce dernier modèle est théoriquement valable pour des écoulements rampants (Re_c <1). Parmi les expériences décrites au chapitre 2, celle menée avec des collecteurs de 1,6 mm de diamètre et à une vitesse superficielle de 19,89 cm/s présente un nombre Re_c supérieur à 20. Le régime d'écoulement étant dans ce cas intermédiaire, les modèles semi-empirique de D'Ottavio et Goren (1982) et empirique d'Otani et al. (1989) ont été choisis.
L'utilisation des diamètres équivalents dans ces différents modèles permet d'obtenir l'évolution de l'efficacité unitaire de collecte en fonction de la masse de particules collectée et donc celle d'un lit granulaire grâce à l'équation 48.

Choix des modèles de perte de charge : D'après l'état de l'art, la loi de Kozeny-Carman (équations 70 à 72) a été utilisée pour modéliser les expériences en régime laminaire et celle de Forchheimer (équations 73 et 74) pour prédire le colmatage en régime d'écoulement intermédiaire. Dans la loi de Forchheimer, la constante de Burke-Plummer a été fixée à 0,3, à savoir la valeur communément rencontrée dans la littérature.

V.2.2 Procédure de calcul

V.2.2.1 Principales caractéristiques

Les expressions liant la masse collectée aux différents diamètres de collecteurs équivalents ont été implémentées dans un code Matlab® présentant deux caractéristiques principales. La première consiste en une discrétisation spatiale du lit granulaire. En effet, puisque le dépôt n'est pas uniforme à travers le lit granulaire, ce dernier doit être discrétisé en fines couches perpendiculaires à la direction de l'écoulement. La profondeur d'une couche a été définie grâce au concept d'éléments unitaires (EU) présenté dans l'état de l'art (équation 86) et est par conséquent de l'ordre d'un diamètre de collecteur. La seconde caractéristique importante est l'utilisation du diamètre équivalent en volume pour représenter les particules nanostructurées (agglomérats) lors de l'utilisation des différents modèles d'efficacité. Ainsi comme dans le cas de la simulation du colmatage avec GeoDict®, le choix de ce diamètre équivalent permet de modéliser un dépôt présentant la même quantité de matière que dans la réalité.

V.2.2.2 Schéma numérique de calcul

La perte de charge et l'efficacité de collecte sont initialisées avec les valeurs calculées pour un lit granulaire vierge en utilisant les modèles d'état initial présentés en début de chapitre. La distribution granulométrique massique est maintenue constante à l'entrée de la première discrétisation du lit granulaire (i.e., premier élément unitaire). L'efficacité de collecte du premier EU vis-à-vis de chaque de taille de particules est ensuite calculée ainsi que les masses collectées correspondantes pendant un intervalle de temps donné. En connaissant l'efficacité de collecte de cet EU, il est également possible de déterminer la composition de l'aérosol entrant l'EU suivant et la masse de particules de chaque taille y étant retenue à leur tour en appliquant la même approche que pour le premier EU. Cette procédure est ensuite répétée pour tous les EU successifs. Pour chacun d'entre eux, l'épaisseur (β) de la couche de dépôt par collecteur est calculée comme la différence entre le rayon de la sphère ayant le même volume que l'ensemble collecteur/dépôt (incluant la porosité du dépôt) et celui du collecteur vierge initial. Le volume d'un collecteur et de son dépôt doit être calculé en utilisant les équations 96 et 97 à n'importe quel instant de la filtration. β est ensuite comparé à l'épaisseur critique de la couche de dépôt autour d'un collecteur, β^*. Au sein d'un EU donné, tant que β est inférieure à β^*, cet EU se situe en phase A. La phase B commence dans un EU lorsque β^* devient supérieure à β. Ainsi tous les EU n'entrent pas en phase B au même moment. La fraction massique de particules déposées dans chaque EU est utilisée pour calculer le diamètre moyen des agglomérats composant le dépôt et ainsi obtenir le nouveau diamètre équivalent de collecteur pour chaque EU. La connaissance de ces nouveaux diamètres équivalents permet alors d'obtenir l'efficacité massique de collecte et la perte de charge instantanées. Les diamètres de collecteur équivalents sont calculés par les expressions 98 et 104 durant les phases A et B, respectivement. Toute cette procédure est ensuite répétée pour les intervalles de temps suivant jusqu'à ce que le temps de modélisation défini par l'utilisateur soit atteint.

V.3 Comparaison des données du modèle et les résultats expérimentaux

Afin de valider ce modèle, les résultats calculés ont été comparés avec ceux des phases A et B issus des expériences de colmatage décrites au chapitre 2. Les paramètres de ces expériences sont rappelés dans le tableau suivant :

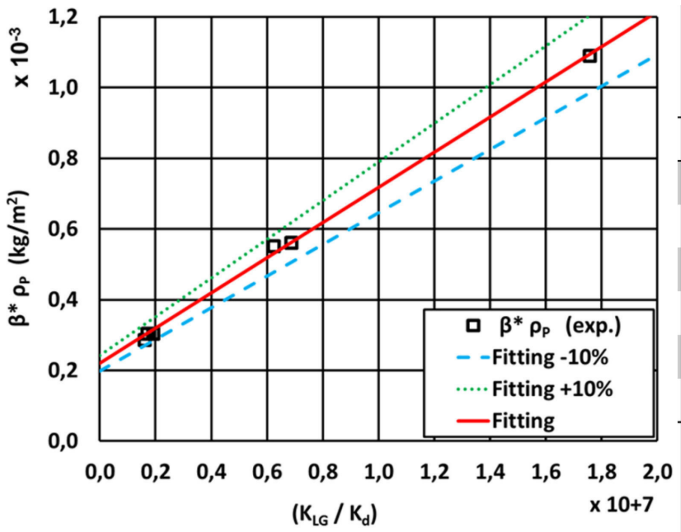
Tableau V-1 Conditions opératoires des expériences de colmatage

Numéro d'expériences (ID)	Matériau des particules	Vitesse superficielle (cm/s)	Diamètre équivalent en mobilité électrique médian (nm)	Diamètre de collecteurs (mm)	Concentration massique (mg/m^3)
1	Zn-Al	19,89	78,3	0,5	72,86
2 (a/b/c)	Zn-Al	19,89	78,3	1	79,29 /72,47/62,02
3	Zn-Al	19,89	78,3	1,6	91,8
4	Zn-Al	7,49	78,3	0,5	109,19
5	Carbone	19,89	61,6	0,5	1,83
6	Fer	19,89	46,1	0,5	0,41

V.3.1 Détermination du critère de transition, β*

D'après la définition des phases A et B données précédemment, le facteur de transition, β*, correspond à la quantité de dépôt au-delà de laquelle un effet significatif du colmatage est observé sur l'efficacité de collecte et la perte de charge. D'après la représentation conceptuelle des collecteurs et de leur dépôt utilisée dans cette étude, il est cohérent d'exprimer cette masse critique de dépôt comme une épaisseur limite de la couche de dépôt autour des collecteurs. Durant le colmatage, le flux d'air est réparti entre l'espace libre des pores et le dépôt en fonction de leur résistance à l'écoulement respective. Ainsi, β* peut intuitivement être dépendante de la perméabilité du dépôt (K_d) et de celle du lit granulaire (K_{LG}). Ces perméabilités peuvent être calculées au moyen de modèles de perte de charge de dépôt de particules nanostructurées et de lit granulaire vierge, respectivement. Dans cette étude, K_{LG} a été calculée grâce à la loi de Kozeny-Carman (équations 71 et 72) et K_d a été obtenue en utilisant le modèle de Thomas et al. (2014) (équations 75 - 77). Les résistances à l'écoulement du dépôt et de l'espace libre des pores dépendent directement du volume occupé par le dépôt. Ce volume est lié à la masse calculée de particules collectées par la masse volumique du matériau des particules et par la porosité du dépôt. Cette dernière étant directement prise en compte dans le calcul de la perméabilité du dépôt, il a été supposé que β* devait par conséquent également être une fonction de la masse volumique du matériau des particules. En appliquant ce raisonnement, une corrélation linéaire a pu être observée entre les paramètres décrits ci-dessus et les valeurs de β* déterminées par ajustement du modèle aux résultats expérimentaux (Figure V-8).

$$\beta^* \rho_p = 5\,.10^{-11}\left(\frac{K_{LG}}{K_d}\right) + 2\,.10^{-4} \qquad 105$$



Expérience	Facteur de transition β* (nm)
1	53
2 (a, b, c)	98
3	190
4	48
5	135
6	70

Figure V-8 Facteur de transition, β*, en fonction de la masse volumique du matériau des particules et du rapport entre les perméabilités du lit granulaire et du dépôt

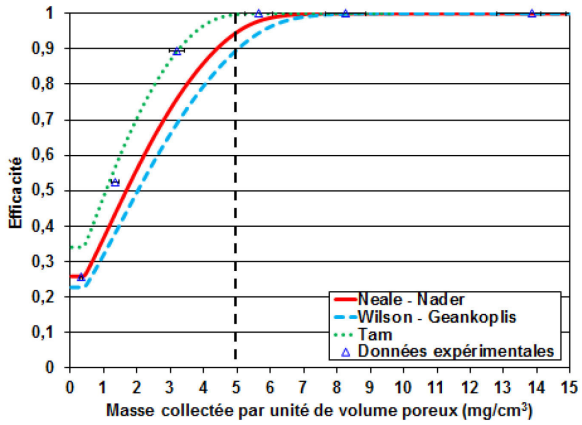
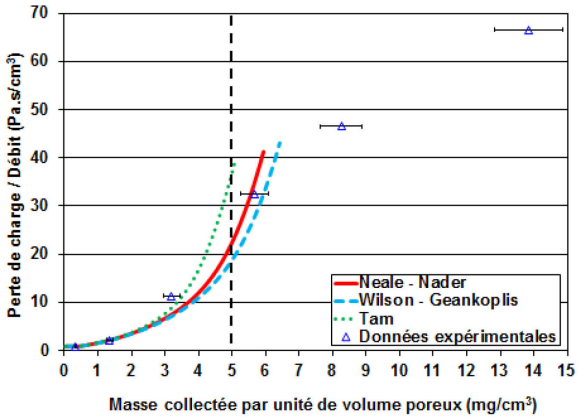
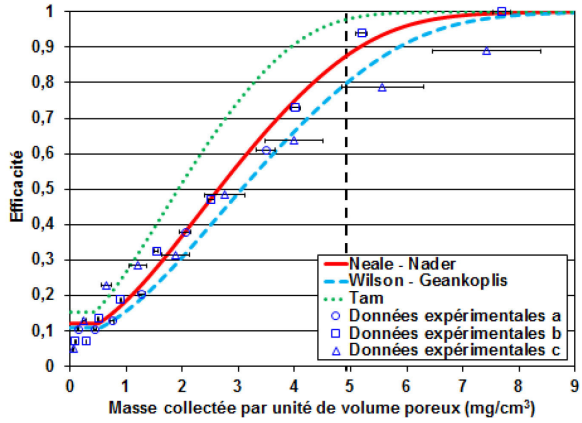
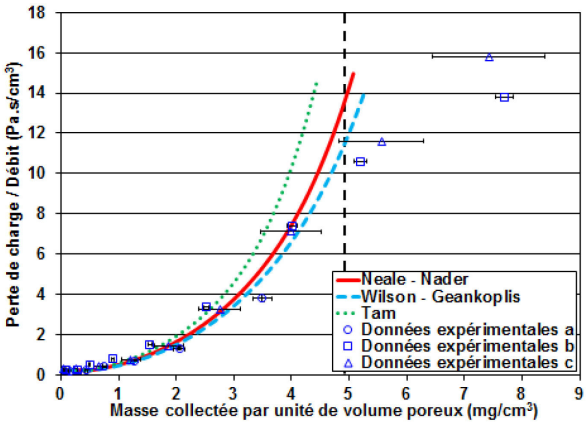
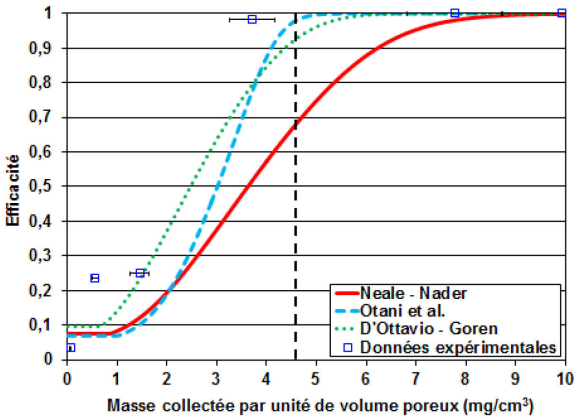
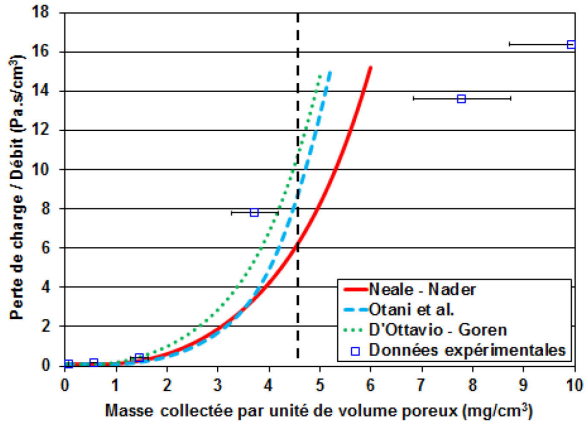
V.3.2 Evolution de l'efficacité et de la perte de charge en cours de colmatage

Les évolutions d'efficacité et de perte de charge issues des expériences de colmatage ont été comparées aux résultats théoriques obtenus grâce à la modélisation décrite précédemment. Pour ces comparaisons, les évolutions d'efficacité et de perte de charge ont été représentées en fonction de la masse collectée par unité de volume poreux, i.e., le rapport entre la masse collectée et le volume poreux du lit granulaire.

- **Efficacité**

La Figure V-9 montre un bon accord entre les données expérimentales et les prédictions du modèle de colmatage développé dans cette étude et en particulier dans le cas de particules de Zn-Al. Ces données permettent également d'observer la validité du principe de cette modélisation vis-à-vis de la variation des principaux paramètres expérimentaux tels que le diamètre des collecteurs, la taille et le matériau des particules nanostructurées ou la vitesse superficielle.
Malgré un bon accord de tendance, de légères divergences ont tout de même été observées entre les données expérimentales et les prédictions du modèle dans les cas des particules de carbone et de fer. Ces différences sont visiblement causées par un manque de précision des modèles d'efficacité initiale de collecte, cette dernière étant dans les deux cas sous-estimée. Il faut également noter que le modèle d'efficacité unitaire de collecte initiale permettant d'obtenir les meilleures prédictions pour toutes les configurations expérimentales est difficile à identifier. Néanmoins, l'utilisation des modèles d'écoulement de Tam et Wilson-Geankoplis conduit, respectivement, à une solution majorante et minorante. Ces solutions encadrent généralement les données expérimentales et celles obtenues en utilisant le modèle d'écoulement de Neale-Nader. De plus, il est possible d'observer dans le cas d'expériences réalisées dans les mêmes conditions (expériences 2(a, b, c)) que des variations significatives peuvent être observées à haute efficacité d'une expérience à une autre malgré une allure globale identique. Sur la base de ces observations, il est recommandé d'utiliser le modèle d'écoulement de Neale-Nader qui permet dans la plupart des cas d'obtenir une relativement bonne estimation de l'efficacité de collecte au cours du colmatage.

Dans le cas particulier de l'expérience 3 (collecteurs de 1,6 mm de diamètre) où le nombre de Reynolds Re_c supérieur à 20 implique un régime d'écoulement intermédiaire, on remarque que l'utilisation de modèles d'écoulement développés pour ce type de régime (D'Ottavio et Goren (1982), Otani et al. (1989)) fournit une meilleure estimation de l'évolution de l'efficacité que celle obtenue par le modèle de Neale-Nader. Ceci est cohérent avec la limite d'applicabilité de ce dernier donnée dans l'état de l'art, $Re_c < 10$.

Exp.	Efficacité	Perte de charge
1		
2		
3		

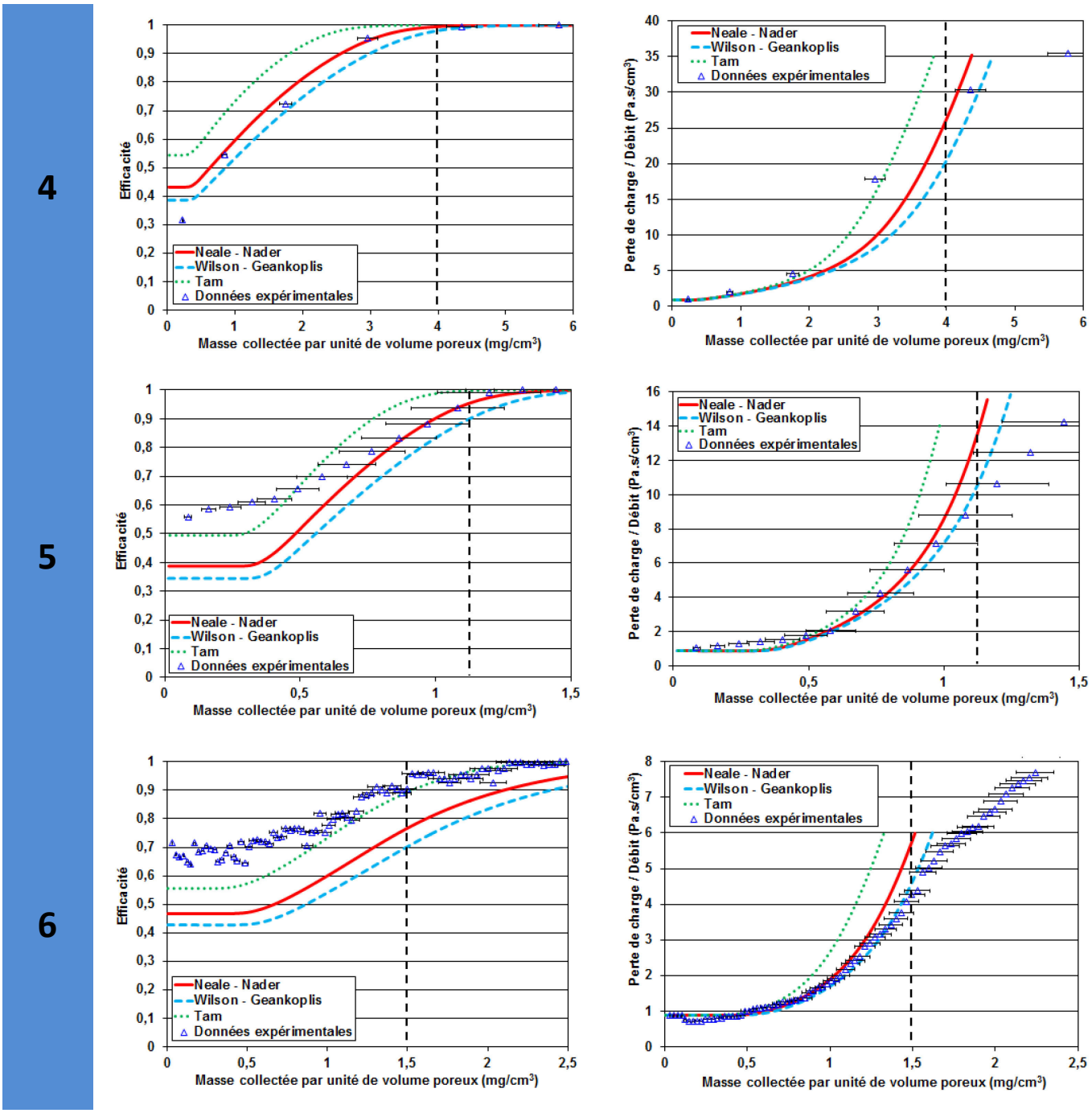


Figure V-9 Comparaison entre les prédictions du modèle de colmatage (efficacité et perte de charge) et les données expérimentales (1, 2, 3, 5, 6)

- **Perte de charge**

Les évolutions de perte de charge expérimentales ont été également comparées aux résultats théoriques du modèle (Figure V-9). Les courbes sur ces graphes représentent la perte de charge durant les phases A et B. Bien que ces évolutions de perte de charge aient été calculées en utilisant les diamètres équivalents de collecteurs dans les équations de Kozeny-Carman (équations 70 - 72) ou de Forchheimer (équations 73 - 74), les différentes courbes théoriques sont identifiées sur la Figure V-9 par le modèle d'écoulement ayant servi à obtenir les efficacités unitaires de collecte et donc les masses collectées nécessaires au calcul des diamètres équivalents de collecteur.

Un bon accord a à nouveau pu être trouvé entre les données expérimentales et le modèle développé dans cette étude. De plus, les observations faites pour la modélisation de l'efficacité restent valables pour celle de la perte de charge. Ainsi, les résultats obtenus avec les modèles de Tam et Wilson représentent, respectivement, toujours des solutions majorantes et minorantes encadrant celle calculée en utilisant le modèle de Neale-Nader. Par ailleurs, l'utilisation du modèle d'écoulement de Neale-Nader pour les calculs de masses collectées donne encore une fois dans la plupart des cas une bonne approximation de l'évolution de la perte de charge durant les phases A et B.
Similairement à la modélisation de l'efficacité, l'utilisation des modèles de D'Ottavio et Goren (1982) et d'Otani et al. (1989) améliore la précision des prédictions d'évolution de perte de charge pour un régime d'écoulement intermédiaire en comparaison des résultats obtenus avec le modèle de Neale-Nader.
Le fait que l'évolution de l'efficacité et de la perte de charge soit modélisée de façon satisfaisante en utilisant un même modèle d'écoulement est un résultat important et nécessaire par soucis de cohérence et de validité des profils de dépôt accessibles grâce au découpage en éléments unitaires. En effet, cela signifie que la répartition de la masse collectée dans la profondeur du lit granulaire obtenue grâce à un modèle d'écoulement prédisant de façon fiable l'évolution de l'efficacité permet également d'obtenir avec une bonne précision celle de la perte de charge.

- **Profils théoriques de dépôt**

Les profils théoriques de dépôt évoqués précédemment et obtenus grâce au découpage en éléments unitaires ont notamment permis d'étudier la répartition de la masse collectée durant les phases A et B. Il a ainsi pu être remarqué que cette répartition devient rapidement très inhomogène pour toutes les configurations testées dans cette étude. Un exemple de profils théoriques obtenus dans les conditions de l'expérience 4 (Zn-Al, d_c = 0,5 mm, U = 7,49 cm/s) est présenté sur la Figure V-10. Ces profils sont exprimés sur cette dernière en termes de fraction de la masse totale collectée instantanée dans chaque élément unitaire (EU).

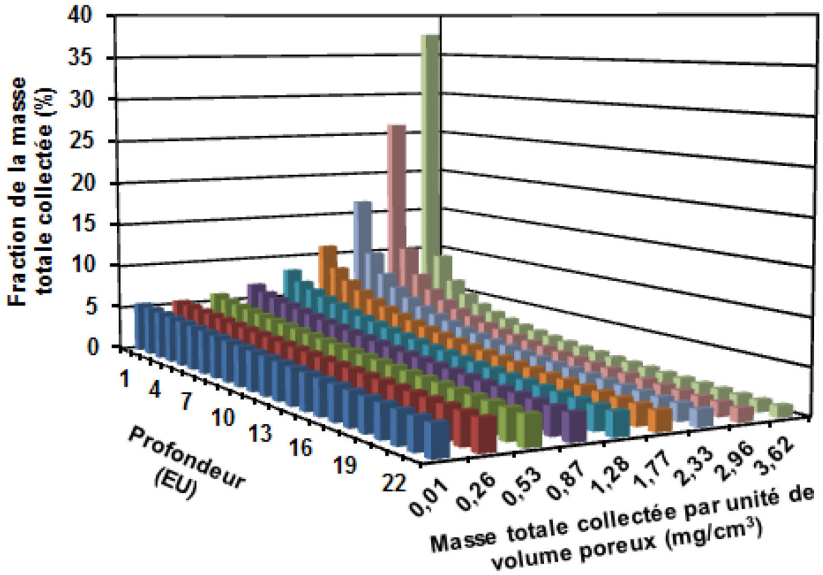


Figure V-10 Profils de dépôt pour différentes masses totales collectées (Expérience n°=4)

Ce profil permet de mettre en évidence qu'au début du colmatage, la répartition du dépôt se fait de façon presque homogène car le dépôt en surface des collecteurs n'engendre pas encore de différence significative d'efficacité unitaire de collecte entre les éléments unitaires. A partir d'un certain degré de colmatage, les collecteurs situés dans les premiers EU deviennent plus efficaces que ceux localisés en aval du fait d'une plus grande quantité de dépôt entourant leur surface. Cette inhomogénéité s'accroit alors de façon quasi-exponentielle au fur et à mesure du colmatage jusqu'à ce que toute la collecte des particules se fasse presque exclusivement dans le premier élément unitaire. La phase B se terminerait alors lorsque la surface libre de ce premier EU serait totalement obstruée laissant place à la phase C décrite au chapitre 2. L'exploitation et l'analyse des profils théoriques de dépôt correspondant à la fin de la phase B (i.e., pour une masse totale collectée modélisée identique à celle déterminée expérimentalement) pourraient s'avérer utiles pour caractériser l'état de colmatage du premier EU à cet instant précis. Ceci pourrait alors potentiellement permettre de trouver une relation prédisant cet état de colmatage en fonction de différents paramètres tels que le diamètre des collecteurs et des particules, la porosité du dépôt ou la vitesse superficielle.

Bien qu'aucune validation expérimentale de ces profils ne soit disponible, il a tout de même pu être observé que les allures obtenues sont similaires avec celles de profils issus de la littérature. A titre d'exemple, les profils calculés par Gitis et al. (2010) lors de la filtration d'hydrosols microniques et ceux correspondant à l'expérience 4 (Zn-Al, d_c = 0,5 mm, U = 7,49 cm/s) sont représentés ci-dessous :

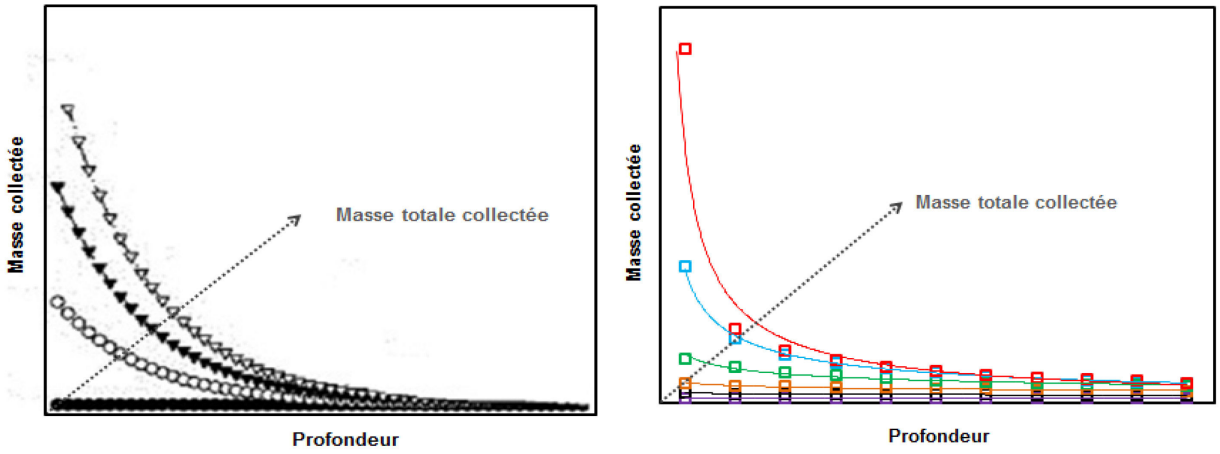


Figure V-11 Comparaison qualitative des allures de profils issus de la littérature (à gauche) (d'après Gitis et al. (2014)) et calculés théoriquement avec le modèle de colmatage (à droite)

V.3.3 Etude de sensibilité du modèle

A la manière de l'étude de sensibilité réalisée dans le chapitre sur la simulation du colmatage avec GeoDict®, la réponse du modèle à la variation de certains paramètres a également été investiguée. Parmi les paramètres dont la détermination peut être sujette à des incertitudes figurent principalement la porosité du dépôt et le diamètre des particules primaires qui participent au calcul du critère de transition, β*, et de l'épaisseur de dépôt instantanée autour des collecteurs et donc à l'évolution de l'efficacité et de la perte de charge au travers des diamètres équivalents. Dans le cas de la porosité du dépôt, la relation de Thomas et al. (2014) a été utilisée (équation 77). Bien que cette relation ne comporte aucun paramètre d'ajustement, l'étude dont elle est issue montre qu'une incertitude non-négligeable peut exister (Figure V-12).

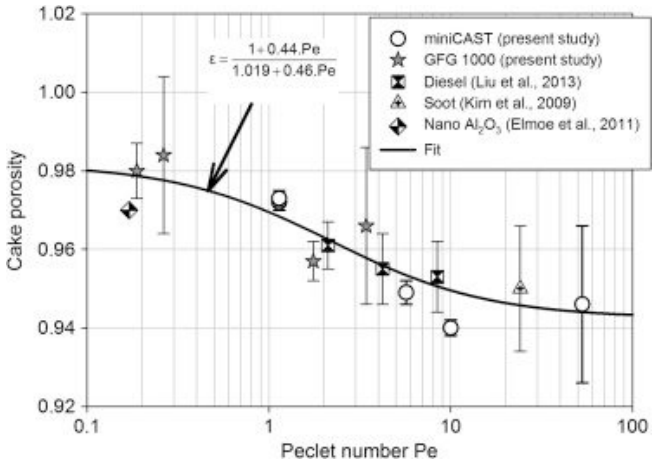


Figure V-12 Mesures expérimentales de porosité de gâteaux de particules nanostructurées en fonction du nombre de Péclet et représentation de la relation 30 (D'après Thomas et al. (2014))

Dans notre étude, le nombre de Péclet basé sur le diamètre équivalent médian en mobilité électrique des particules est compris entre 8 et 45 ce qui correspond, d'après la relation 77, à des porosités allant de 94% à 96%. D'après la Figure V-12, les incertitudes dans cette plage de nombres de Péclet peuvent conduire à des valeurs de porosité s'étendant d'environ 92% à 97%. Afin de connaitre l'impact que pourrait avoir cette incertitude sur les résultats, les prédictions du modèle pour une configuration donnée ont été comparées entre elles pour des porosités de dépôt fixées à 90%, 92%, 95% et 98% (Figure V-13). Sur la Figure V-13, les résultats expérimentaux sont aussi représentés pour étudier l'écart à la réalité que pourrait introduire une variation de porosité de dépôt.

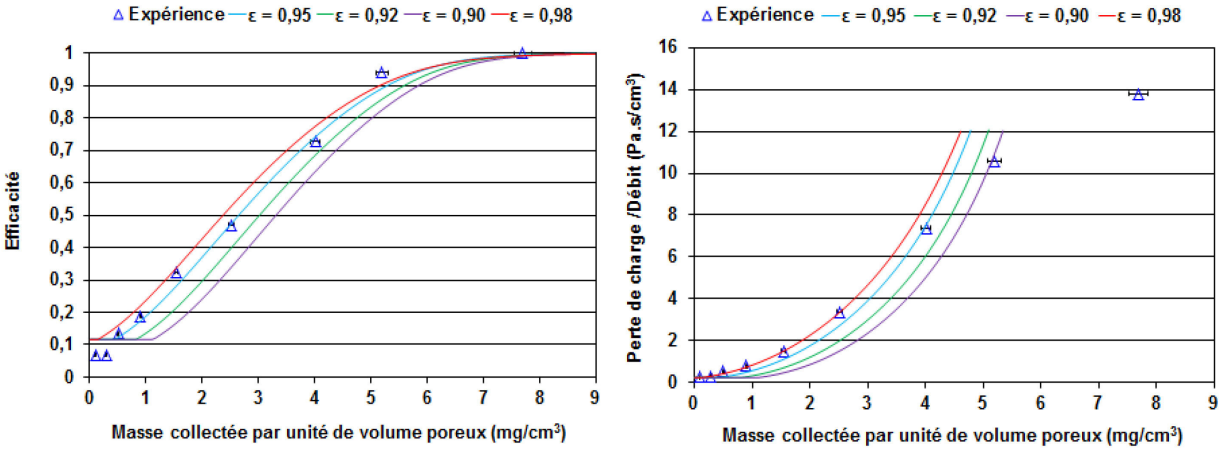


Figure V-13 Comparaison des prédictions du modèle dans les conditions de l'expérience 2 pour différentes porosité de dépôt (de 90% à 98%)

Cette comparaison montre logiquement que la porosité du dépôt exerce sa plus forte influence dans la phase A. En effet l'augmentation de la porosité conduit, à masse collectée égale, à une épaisseur de couche de dépôt plus grande et ainsi au déclenchement plus précoce de la phase B. On observe également que la différence d'efficacité induite par ce démarrage plus précoce de la phase B à forte porosité se réduit tout au long du colmatage pour devenir nul à très haute efficacité. Ceci est dû au calcul de la surface spécifique des collecteurs par la relation 103. En effet, cette équation fait intervenir la surface du LCE, qui est constante pour une masse collectée donnée indépendamment de la porosité du dépôt, divisée par le volume délimité par l'enveloppe extérieure d'un MPU. Ce volume est une fonction de l'épaisseur de la couche de dépôt par collecteur, qui augmente avec sa porosité.

Par conséquent, la surface spécifique d'un collecteur et son dépôt diminue avec l'augmentation de la porosité pour une masse collectée identique. Le fait que l'efficacité de collecte soit une fonction croissante de la surface spécifique provoque donc un plus fort taux d'augmentation de cette dernière en cas de baisse de la porosité du dépôt. Ce comportement est aussi observé concernant les prédictions de la perte de charge, mais est peu visible ici car la réduction de l'écart entre les courbes se fait très progressivement et devient véritablement visible lors de la phase C qui n'est pas modélisée dans cette étude. Ces essais permettent ainsi de montrer qu'une variation de porosité couvrant la totalité de la gamme classiquement rencontrée pour des nanoparticules (entre 90 et 98%) n'introduit ni de changement d'allure des courbes d'efficacité et de perte de charge, ni de fluctuations importantes des résultats du modèle qui restent proches des données expérimentales et centrés autour de ces dernières.

Concernant, le diamètre des particules primaires utilisé dans le calcul de β*, la configuration de l'expérience 2 a été utilisée dans un premier temps (Zn-Al, collecteurs de 1 mm de diamètre). Dans la littérature, le diamètre des particules primaires de Zn-Al a été mesuré à 8,6 nm et 9,1 nm (Charvet et al. 2015; Bémer et al. 2013). Des diamètres de particules primaires (d_{pp}) de 5 nm, 10 nm, 15 nm, 20 nm et 50 nm ont été testés dans cette étude de sensibilité.

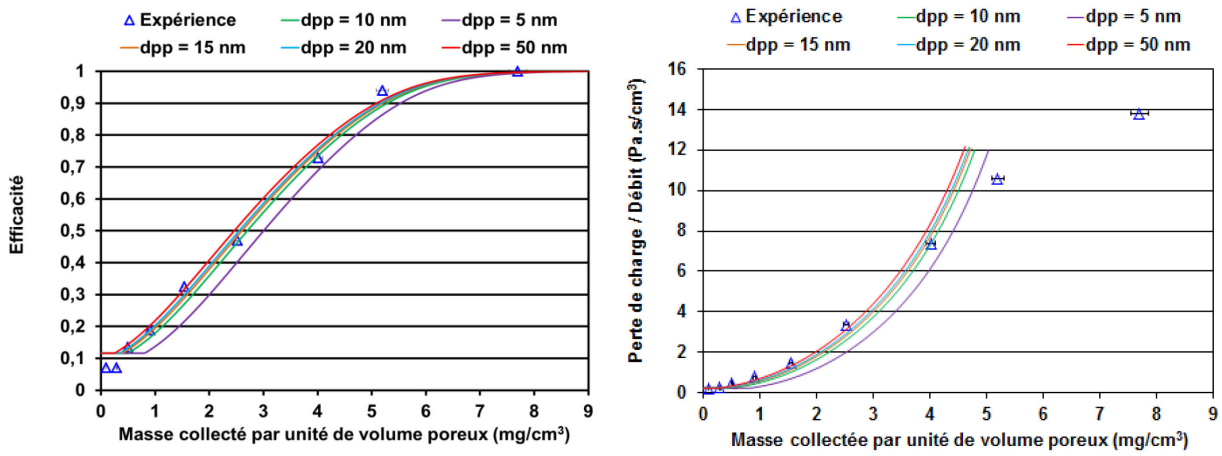


Figure V-14 Comparaison des prédictions du modèle dans les conditions de l'expérience 2b pour différents diamètres de particules primaires (de 5 nm à 50 nm)

D'après la Figure V-14, les courbes obtenues pour des diamètres de particules primaires encadrant ceux issus de la littérature restent très proches les unes des autres et des résultats expérimentaux. Ce paramètre ne semble donc pas être très sensible dans le cas du Zn-Al. Une erreur dans la définition de cette grandeur dont la détermination peut s'avérer fastidieuse expérimentalement ne devrait donc pas introduire d'importantes variations dans les prédictions du modèle. De plus, il est intéressant de noter que l'écart entre les prédictions pour différents diamètres de particules primaires devient presque inexistant au-delà d'une certaine valeur. En effet, les courbes correspondant à un d_{pp} de 20 nm et de 50 nm sont quasiment confondues. On remarque par contre que cet écart devient plus significatif pour de faibles valeurs de d_{pp}.. Puisque, le modèle semble être plus impacté par une variation de d_{pp} lorsque ce dernier est inférieur à 10 nm, cette même étude de sensibilité a été réalisée dans le cas de l'aérosol de fer (expérience 6) dont les agglomérats sont composés de particules primaires d'environ 2 nm ± 0,5 nm (Charvet et al. 2014). La Figure V-15 confirme cette plus grande sensibilité sur cette plage de diamètre de particules primaires avec une variation de plus en plus importante des résultats avec la diminution de ce paramètre.

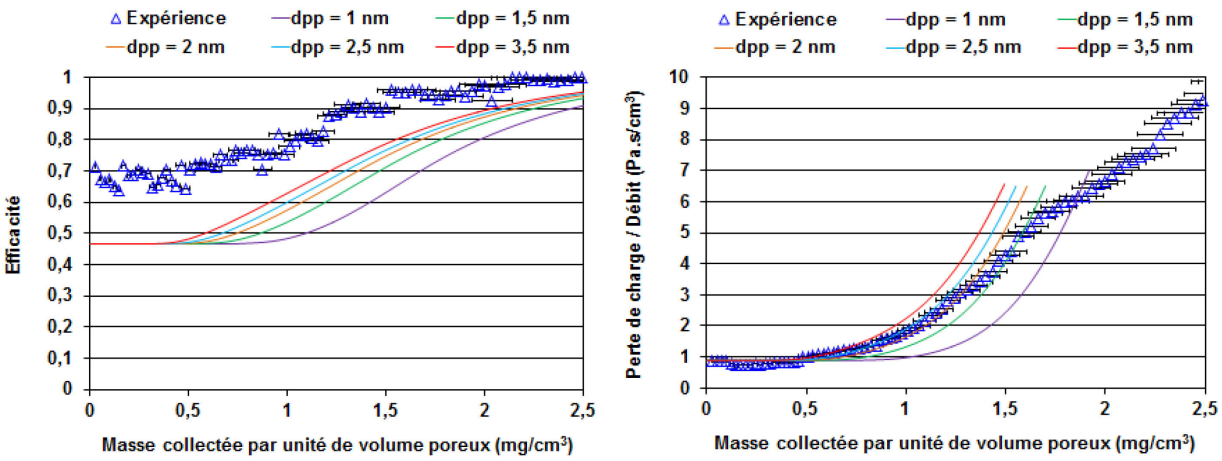


Figure V-15 Comparaison des prédictions du modèle dans les conditions de l'expérience 6 pour différents diamètres de particules primaires (de 1 nm à 3,5 nm)

Cependant, on remarque que sur la plage de d_{pp} fournie dans la littérature pour cet aérosol (1,5 nm – 2,5 nm), l'accord avec les données expérimentales ne change pas significativement et que l'allure des résultats du modèle est conservée.

D'après cette étude de sensibilité vis-à-vis de la porosité du dépôt et du diamètre des particules primaires, il apparait donc que le modèle de colmatage développé lors de cette étude est relativement robuste. En effet, les prédictions présentent de faibles variations pour des valeurs de ces deux paramètres représentant les limites inférieures et supérieures des intervalles auxquels ils peuvent appartenir compte tenu de la précision disponible pour leur détermination. Ceci permet par conséquent d'éviter qu'ils ne servent de variables d'ajustement.

V.4 Conclusion

Dans ce chapitre, le développement d'un modèle prédisant l'évolution des performances de lits granulaires lors de leur colmatage par des aérosols de nanoparticules a été présenté. Ce modèle couvre la période de filtration en profondeur (phases A et B) caractérisée par une augmentation simultanée de l'efficacité de collecte et de la perte de charge liée à l'accumulation du dépôt. Ce modèle est basé sur l'utilisation de diamètres de collecteur équivalents pour chacune des phases A et B recalculés à chaque incrément de masse collectée et injectés à la place du diamètre du collecteur vierge dans les modèles d'efficacité et de perte de charge initiales. Durant la première phase la faible évolution de la perte de charge et de l'efficacité a conduit à utiliser un diamètre de collecteur équivalent en volume. Lors de la phase B, la forte augmentation de l'efficacité et de la perte de charge a été attribuée à celle de la surface spécifique des collecteurs liée à l'accumulation du dépôt des nanoparticules. Un diamètre de collecteur équivalent en surface spécifique a donc été défini pour décrire cette seconde phase. Pour calculer ce diamètre, une représentation schématique de la morphologie du dépôt et de la structure géométrique des éléments le composant a dû être imaginée sur la base de données de la littérature (structure dendritique) et des observations réalisées sur la ligne et la nappe de collecteurs décrites au chapitre précédent (dépôt en couche uniforme). D'après l'état de l'art présenté dans ce chapitre, ce modèle s'inscrit par sa conception dans la catégorie des modèles rationnels en modélisant les particules déposées comme des collecteurs additionnels. De plus, ce modèle est basé sur une discrétisation de la profondeur du lit granulaire en fines couches afin de rendre compte également de l'hétérogénéité du dépôt. La profondeur des discrétisations est définie en utilisant le concept d'éléments unitaires (EU) développé par Payatakes (1973) (Figure V-5) et utilisé dans la majorité des modèles rationnels de la littérature. Les capacités prédictives de ce

modèle sont obtenues grâce à la corrélation semi-empirique (équation 105) permettant de déterminer la quantité de dépôt dans un EU pour laquelle la phase B succède à la phase A. De par la représentation de la morphologie du dépôt (Figure V-7), cette quantité a été définie comme une épaisseur limite de la couche de dépôt autour d'un collecteur (β*).

Les prédictions du modèle se sont avérées en bon accord avec des données expérimentales de colmatage obtenues dans des configurations variées, à savoir trois natures et tailles de particules (Fer/Carbone/Zn-Al), trois diamètres de collecteur (0,5 mm/1 mm/1,6 mm) et deux vitesses superficielles (7,49 cm/s et 19,89 cm/s). De plus, une étude de sensibilité a permis de montrer la robustesse du modèle vis-à-vis de la variation des deux principaux paramètres pour lesquels des incertitudes importantes peuvent peser sur leur détermination, à savoir la porosité du dépôt et le diamètre des particules primaires. Il est malgré tout apparu qu'un soin particulier doit être apporté à la détermination de ce dernier paramètre lorsqu'il est inférieur à 5 nm.

Grâce au découpage en éléments unitaires de la profondeur du lit granulaire, ce modèle donne également accès à des profils théoriques de dépôt. L'étude de ces profils à la fin de la phase B pourrait permettre de caractériser l'état de colmatage des lits granulaires à cet instant de transition et ainsi aider à la prédiction du début de la phase C dans le premier EU. D'un point de vue qualitatif, il a pu être observé que ces profils présentent les mêmes allures globales au cours du colmatage pour toutes les configurations testées et qu'elles se rapprochent de celles de profils issus de la littérature. D'après ces profils, il a ainsi été remarqué qu'une très faible profondeur (1er EU et/ou 2ème EU) est effectivement utilisée pour la collecte des particules et qu'une majeure partie du lit granulaire ne participe quasiment pas à la filtration en profondeur des particules. Cette mauvaise répartition de la masse collectée nuit au rendement du procédé en raccourcissant la durée de la phase de filtration en profondeur et en obligeant ainsi un décolmatage plus précoce que si la masse était répartie équitablement dans les EU. Afin de pallier ce problème, une solution est proposée au chapitre suivant dans le cadre d'une démarche d'optimisation globale du procédé.

Références

Bémer, D., I. Subra, Y. Morele, A. Charvet, et D. Thomas. 2013. « Experimental study of granular bed filtration of ultrafine particles emitted by a thermal spraying process ». *Journal of Aerosol Science* 63 (septembre): 25–37.

Brinkman, H. C. 1949. « A Calculation of the Viscous Force Exerted by a Flowing Fluid on a Dense Swarm of Particles ». *Applied Scientific Research* 1 (1): 27–34.

Burganos, V. N., E. D. Skouras, C. A. Paraskeva, et A. C. Payatakes. 2001. « Simulation of the Dynamics of Depth Filtration of Non-Brownian Particles ». *AIChE Journal* 47 (4): 880–894.

Charpentier, Jean-Claude. 1999. « Éléments de mécanique des fluides Application aux milieux poreux ». *Techniques de l'ingénieur Transfert de matière en génie des procédés* base documentaire : TIB326DUO. (ref. article : j1065).

Charvet, A., S. Bau, D. Bémer, et D. Thomas. 2015. « On the Importance of Density in ELPI Data Post-Treatment ». *Aerosol Science and Technology* 49 (12): 1263‑70.

Charvet, A., S. Bau, N. E. Paez Coy, D. Bémer, et D. Thomas. 2014. « Characterizing the Effective Density and Primary Particle Diameter of Airborne Nanoparticles Produced by Spark Discharge Using Mobility and Mass Measurements (Tandem DMA/APM) ». *Journal of Nanoparticle Research* 16 (5): 1‑11.

Chiang, H. W., et C. Tien. 1985. « Dynamics of Deep-Bed Filtration. Part I: Analysis of Two Limiting Situations ». *AIChE Journal* 31 (8): 1349–1359.

Chiang, H. W., et C. Tien. 1985. « Dynamics of Deep-Bed Filtration. Part II: Experiment ». *AIChE Journal* 31 (8): 1360–1371.

Choo, C.-U, et C. Tien. 1995a. « Analysis of the Transient Behavior of Deep-Bed Filtration ». *Journal of Colloid and Interface Science* 169 (1): 13–33.

———. 1995b. « Simulation of Hydrosol Deposition in Granular Media ». *AIChE Journal* 41 (6): 1426–1442.

Davies, C.N. 1973. *Air filtration*. London New York : Academic Press.

Diouri, Mohamed. 1987. *Contribution à l'étude du comportement aérodynamique des aérosols : mise au point d'un spectromètre diffusionnel et inertiel (SDI 2000)*.

D'Ottavio, T., et S. L. Goren. 1982. « Aerosol Capture in Granular Beds in the Impaction Dominated Regime ». *Aerosol Science and Technology* 2 (2): 91–108.

Fichman, M., C. Gutfinger, et D. Pnueli. 1988. « Effect of particle loading on granular bed filtration—The cluster enhanced filter model ». *Journal of Aerosol Science* 19 (4): 425–441.

Gitis, V., I. Rubinstein, M. Livshits, et G. Ziskind. 2010. « Deep-bed filtration model with multistage deposition kinetics ». *Chemical Engineering Journal* 163 (1–2): 78–85.

Gutfinger, C., D. Pnueli, et M. Fichman. 1988. « Effect of particle loading on granular bed filtration—Extension of the CEF model to polydisperse systems ». *Journal of Aerosol Science* 19 (4): 443‑50.

Gutfinger, C., et G.I. Tardos. 1979. « Theoretical and experimental investigation on granular bed dust filters ». *Atmospheric Environment (1967)* 13 (6): 853–867.

Happel, J. 1958. « Viscous Flow in Multiparticle Systems: Slow Motion of Fluids Relative to Beds of Spherical Particles ». *AIChE Journal* 4 (2): 197–201.

Herzig, J. P., D. M. Leclerc, et P. Le Goff. 1970. « Flow of Suspensions through Porous Media—Application to Deep Filtration ». *Industrial & Engineering Chemistry* 62 (5): 8–35.

Iwasaki, T. 1937. « Some notes on sand filtration ». *Journal of the American Water Works Association* 29 (10): 1591–1602.

Jung, Y., et C. Tien. 1991. « New correlations for predicting the effect of deposition on collection efficiency and pressure drop in granular filtration ». *Journal of Aerosol Science* 22 (2): 187–200.

Levich, V. G. 1962. *Physicochemical Hydrodynamics.* Englewood Cliffs, N.J.: Prentice-Hall.

Macdonald, I. F., M. S. El-Sayed, K. Mow, et F. A. L. Dullien. 1979. « Flow through Porous Media-the Ergun Equation Revisited ». *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 18 (3): 199‑208.

Mauret, E., et M. Renaud. 1997. « Transport phenomena in multi-particle systems—I. Limits of applicability of capillary model in high voidage beds-application to fixed beds of fibers and fluidized beds of spheres ». *Chemical Engineering Science* 52 (11): 1807‑17.

Mouret, G. 2008. *Étude de la filtration des aérosols nanométriques*.

Neale, G. H., et W. K. Nader. 1974. « Prediction of Transport Processes within Porous Media: Creeping Flow Relative to a Fixed Swarm of Spherical Particles ». *AIChE Journal* 20 (3): 530–538.

O'Melia, C. R., et W Ali. 1978. « The role of retained particles in deep bed filtration ». In *Progress in Water Technology*.

Otani, Y., C. Kanaoka, et H. Emi. 1989. « Experimental Study of Aerosol Filtration by the Granular Bed Over a Wide Range of Reynolds Numbers ». *Aerosol Science and Technology* 10 (3): 463–474.

Payatakes, A. 1973. *A New Model for Granular Porous Media: Applications to Filtration Through Packed Beds*. Syracuse University.

Payatakes, A. C., et L. Gradoń. 1980. « Dendritic Deposition of Aerosols by Convective Brownian Diffusion for Small, Intermediate and High Particle Knudsen Numbers ». *AIChE Journal* 26 (3): 443‑54.

Pendse, H., et C. Tien. 1982. « A simulation model of aerosol collection in granular media ». *Journal of Colloid and Interface Science* 87 (1): 225–241.

Pesic, R., T. Kaludjerovic-Radoicic, N. Boskovic-Vragolovic, Z. Arsenijevic, et Z. Grbavcic. 2015. « Pressure Drop in Packed Beds of Spherical Particles at Ambient and Elevated Air Temperatures ». *Chemical Industry and Chemical Engineering Quarterly* 21 (3): 419‑27.

Pfeffer, R. 1964. « Heat and Mass Transport in Multiparticle Systems ». *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 3 (4): 380–383.

Punčochář, M, et J Drahoš. 2000. « Limits of applicability of capillary model for pressure drop correlation ». *Chemical Engineering Science* 55 (18): 3951‑54.

Skouras, E. D., V. N. Burganos, C. A. Paraskeva, et A. C. Payatakes. 2004. « Simulation of downflow and upflow depth filtration of non-Brownian particles under constant flowrate or constant pressure drop conditions ». *Journal of the Chinese Institute of Chemical Engineers* 35 (1): 87‑100.

Takahashi, T., S. A. Walata, et Chi Tien. 1986. « Transient Behavior of Granular Filtration of Aerosols—effect of Aerosol Deposition on Filter Performance ». *AIChE Journal* 32 (4): 684–690.

Tam, C. K. W. 1969. « The drag on a cloud of spherical particles in low Reynolds number flow ». *Journal of Fluid Mechanics* 38 (3): 537–546.

Tardos, G. I., C. Gutfinger, et N. Abuaf. 1976. « High Peclet Number Mass Transfer to a Sphere in a Fixed or Fluidized Bed ». *AIChE Journal* 22 (6): 1147–1150.

Tardos, G.I., N. Abuaf, et C. Gutfinger. 1978a. « Dust Deposition in Granular Bed Filters: Theories and Experiments ». *Journal of the Air Pollution Control Association* 28 (4): 354–363.

———. 1978b. « Dust Deposition in Granular Bed Filters: Theories and Experiments ». *Journal of the Air Pollution Control Association* 28 (4): 354‑63.

Thomas, D., F. X. Ouf, F. Gensdarmes, S. Bourrous, et L. Bouilloux. 2014. « Pressure drop model for nanostructured deposits ». *Separation and Purification Technology* 138 (décembre): 144‑52.

Tien, C., et A. C. Payatakes. 1979. « Advances in Deep Bed Filtration ». *AIChE Journal* 25 (5): 737–759.

Tien, C., et B. V. Ramarao. 2011. *Granular Filtration of Aerosols and Hydrosols*. Elsevier.

Tien, C., R. M. Turian, et H. Pendse. 1979a. « Simulation of the Dynamic Behavior of Deep Bed Filters ». *AIChE Journal* 25 (3): 385–395.

———. 1979b. « Simulation of the Dynamic Behavior of Deep Bed Filters ». *AIChE Journal* 25 (3): 385‑95.

Vigneswaran, S., et Chi Tien. 1987. « Transient behavior of deep-bed filtration of brownian particles ». *Chemical Engineering Science* 42 (11): 2729–2739.

Walata, S. A., T. Takahashi, et C. Tien. 1986. « Effect of Particle Deposition on Granular Aerosol Filtration: A Comparative Study of Methods in Evaluating and Interpreting Experimental Data ». *Aerosol Science and Technology* 5 (1): 23–37.

Wilson, E. J., et C. J. Geankoplis. 1966. « Liquid Mass Transfer at Very Low Reynolds Numbers in Packed Beds ». *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 5 (1): 9‑14.

VI. Optimisation de la durée de vie des lits granulaires

Dans le chapitre introductif, il a été vu que l'utilisation des filtres à fibres classiquement rencontrés dans l'industrie pose un certain nombre de problèmes pour la filtration des particules ultrafines générées par certains procédés industriels tels que la métallisation. Ainsi, ils ne constituent souvent pas pour ce type d'effluents une solution techniquement et économiquement viable. Cette incompatibilité technique vis-à-vis des PUF provient de l'incapacité des médias fibreux à être efficacement décolmatés afin de retrouver une perte de charge acceptable. Cette difficulté engendre la nécessité de leur remplacement relativement fréquemment. En tant qu'alternative, les lits granulaires présentent une dynamique de colmatage différente puisque les particules sont majoritairement piégées dans leur profondeur. La filtration par lits granulaires mène ainsi à une augmentation de la perte de charge et de l'efficacité de collecte par modification de leur structure interne sous l'effet des particules déposées à l'inverse des médias fibreux dont les performances évoluent principalement de par la formation d'un gâteau de particules en surface. Cette utilisation d'une plus grande capacité de rétention des lits granulaires ne dispense cependant pas de la nécessité d'un décolmatage du lit ou d'une régénération périodique des collecteurs afin de retrouver une perte de charge d'un niveau acceptable. En effet, il a été relevé dans la littérature (Bémer et al. 2015) et dans le chapitre précédent que le colmatage de lits granulaires réduits à leur plus simple expression, i.e., empilements plans et aléatoires de sphères monodispersées, se faisait quasi-exclusivement dans les premières couches de collecteurs (premiers millimètres). Dans ce type de lits granulaires, la faible profondeur réellement exploitée réduit ainsi considérablement la capacité de rétention effective et par conséquent la durée entre deux restaurations de la perte de charge. Pour remédier à ce problème et ainsi optimiser la durée de vie des lits granulaires, différents designs de procédés de filtration utilisant ce type de médias ont été développés.

VI.1 Etat de l'art

VI.1.1 Lits granulaires mouvants ou circulants

L'une des principales solutions développées pour l'utilisation de lits granulaires dans l'industrie pour la filtration d'aérosols sont les lits granulaires dits mouvants ou circulants, appelés MGBF (Moving Granular Bed Filters). De manière générale, les différents types de MGBF présentés dans cette section ont été développés dans le cadre d'études sur des procédés de production d'énergie à base de charbon ou de biomasse nécessitant la filtration de flux d'air dont les conditions extrêmes de température et de pression proscrivent l'usage des médias fibreux conventionnels. Le principe d'un MGBF repose sur l'écoulement de l'air à traiter au travers d'un écoulement gravitaire de collecteurs. Les collecteurs contaminés par le dépôt sont évacués en continu de l'enceinte filtrante. Ainsi, le procédé peut fonctionner à perte de charge et efficacité constantes si la vitesse d'écoulement des collecteurs est définie en adéquation avec le débit entrant de particules. Plusieurs géométries de MGBF, développées au cours des trois dernières décennies, se distinguent principalement par la direction de l'écoulement du gaz à traiter par rapport à celle des collecteurs (contre-courant, courants-croisés).

VI.1.1.1 MGBF à contre-courant

Parmi les divers procédés de filtration, ceux utilisant classiquement des couches filtrantes statiques utilisent la formation d'un gâteau de particules en surface afin d'augmenter l'efficacité de collecte. Sur ce principe, Brown et al. (2003) ont développé un MGBF à contre-courant afin d'exploiter simultanément les avantages d'une augmentation de l'efficacité par la formation d'un dépôt en surface du média filtrant et d'une régulation continue de la perte de charge (en ligne, sans arrêt du procédé de filtration) par remplacement progressif des collecteurs contaminés par des collecteurs vierges (Figure VI-1).

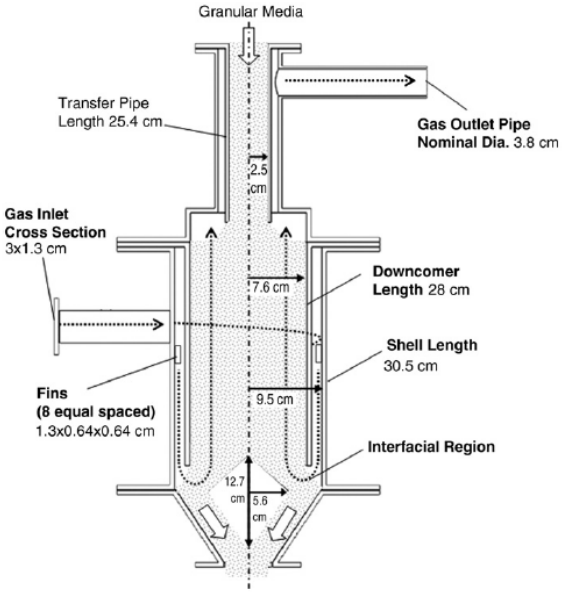


Figure VI-1 Schéma de principe d'un MGBF à contre-courant(El-Hedok et al. 2011)

Dans ce type de MGBF, le flux d'air à traiter rentre horizontalement dans une enveloppe externe et s'écoule vers l'interface air/lit granulaire selon un mouvement rotatif tangentiel. Cela permet notamment de créer un effet cyclonique afin de collecter la fraction la plus grossière des particules. L'air vicié rencontre par la suite des appendices aérodynamiques (stators) qui permettent de redresser le flux de façon à ce que le contact avec la surface du lit granulaire se fasse frontalement. Similairement au cas des lits granulaires fixes dans lesquels le dépôt se crée principalement dans les couches superficielles de collecteurs, il semble d'après différents essais répertoriés dans la littérature que la majorité du dépôt se fasse effectivement dans la région interfaciale de ce type de MGBF (Brown et al. 2003). La création d'une zone interfaciale distincte dans le MGBF se fait au moyen d'un insert en forme de losange permettant de dévier l'écoulement des collecteurs latéralement et de le ralentir spécifiquement dans cette zone du filtre. La quantité de dépôt dans ces couches superficielles est maintenue constante par l'écoulement granulaire et peut-être ajustée en fonction de la perte de charge et de l'efficacité désirée en modifiant le débit d'écoulement des collecteurs (El-Hedok et al. 2011). Après avoir quitté cette zone interfaciale, le gaz remonte à contre-courant au sein d'une épaisseur (zone centrale) bien plus importante de collecteurs s'écoulant sous l'effet de la gravité. Alors que la zone interfaciale permet de filtrer la majorité des particules, cette deuxième région verticale affine l'épuration pour atteindre des efficacités proches de 100%. Le gaz épuré est ensuite évacué par le haut du MGBF dans un espace annulaire entourant le conduit d'alimentation en collecteurs vierges.

Les performances de ce type de MGBF ont été évaluées dans un premier temps par Brown et al. dans le cadre d'une étude sur la filtration de cendres de carbone (de diamètre moyen de 11,46 µm) générées par la combustion de charbon. Lors de leurs expériences, Brown et al. ont utilisé des collecteurs de 2 mm de diamètre et la vitesse superficielle a été fixée par rapport à la section de la zone interfaciale à 20 cm/s. Grâce à ces expériences, il a été montré que ce type de MGBF est capable d'atteindre de très hautes efficacités, i.e., 98%, et de fonctionner à perte de charge constante pour toutes les valeurs testées du rapport, DR (Dust Ratio), entre les débits massiques de particules et de collecteurs (Figure VI-2).

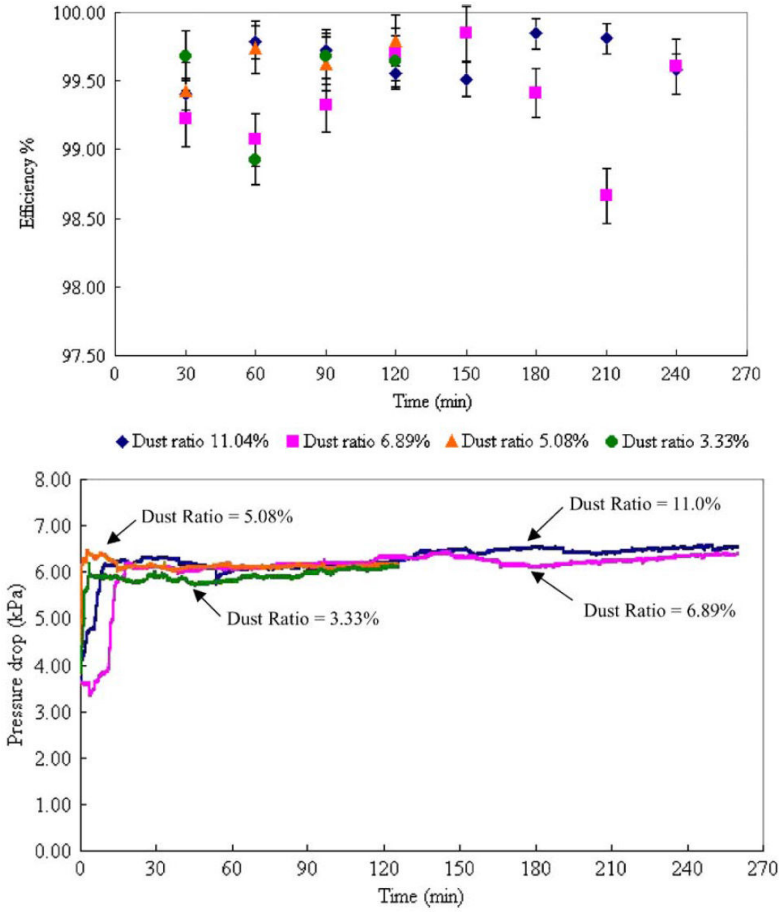


Figure VI-2 Evolution de l'efficacité et de la perte de charge d'un MGBF à contre-courant (Brown et al. 2003)

Afin de minimiser la quantité de collecteurs, il est préférable d'après les auteurs de choisir une valeur de DR la plus grande possible. Pour régler ce paramètre avec précision, El-Hedok et al. ont étudié son influence sur les performances globales du MGBF développé par Brown et al. (Figure VI-1). Les auteurs de cette étude ont ainsi pu montrer qu'il existait un temps de résidence et donc un débit critique de collecteurs dans le MGBF pour une configuration expérimentale donnée. En effet, un temps de résidence des collecteurs important favorise l'accumulation du dépôt dans le filtre à un rythme plus soutenu que celui auquel il est éliminé par la circulation de collecteurs. Ce phénomène provoque progressivement le déplacement d'un front de particules collectées vers la sortie du MGBF engendrant alors un phénomène de percée faisant chuter l'efficacité de collecte. L'optimisation du fonctionnement de ce type de MGBF nécessite ainsi la connaissance de la valeur minimale de débit de collecteurs permettant d'en utiliser le moins possible tout en garantissant une évacuation des particules déposées suffisante pour éviter les phénomènes de percée. Il existe ainsi autant de débits de collecteurs optimaux que de configurations expérimentales puisque l'efficacité de collecte et donc la vitesse d'accumulation du dépôt dépend fortement de paramètres tels que le diamètre des

particules et des collecteurs ou encore de la vitesse d'écoulement du gaz. A titre indicatif, l'ordre de grandeur du temps de résidence maximum d'un collecteur dans ce type de MGBF pour les configurations utilisées par Brown et al. et El-Hedok et al. est compris entre 1,5 et 2 heures (renouvellement de la totalité de collecteurs initialement présents au bout d'environ deux heures). Malgré ces performances prometteuses, ce type de MGBF présente certaines limitations concernant notamment la vitesse d'écoulement du gaz dans la zone centrale (Brown et al. 2003). Dans cette région, la vitesse du gaz ne doit pas être supérieure à celle de fluidisation des collecteurs. En effet, cela a pour conséquence d'augmenter la porosité du lit dans la région basse du MGBF et donc d'en diminuer l'efficacité de collecte. La fluidisation de la zone centrale du MGBF crée également une zone de stagnation où les collecteurs ne sont plus renouvelés ce qui engendre alors une croissance de la perte de charge au cours du temps. En observant la géométrie de ce type de MGBF (Figure VI-1), il est à noter que l'épaisseur de la couche de collecteurs permettant d'obtenir ces très hautes efficacités est de l'ordre de 30 cm. Une telle épaisseur de collecteurs de diamètre de l'ordre du millimètre génère une perte de charge qui, bien que constante, reste très importante en comparaison de celle de médias fibreux présentant une efficacité semblable, i.e., plusieurs milliers de pascals contre quelques centaines. Enfin, aucune méthode de nettoyage des collecteurs usagers n'étant mise en œuvre en circuit fermé par les auteurs, cette grande épaisseur de la région centrale engendre une consommation de matériaux granulaires qui pourrait être problématique si les débits à filtrer sont importants du fait de la totalité du lit à renouveler très fréquemment.

VI.1.1.2 MGBF à courants croisés

Dans un MGBF à courants croisés, le flux de gaz pénètre le lit granulaire latéralement avec une direction perpendiculaire à la circulation des collecteurs. L'architecture de base des MGBF à courants croisés se compose d'une colonne de matériaux granulaires maintenus par une paroi composée de persiennes par lesquelles circule le flux de gaz (Figure VI-3). Le principal inconvénient de ce type de géométrie réside dans la création de zones de stagnation au voisinage des parois empêchant la régénération des collecteurs et engendrant une augmentation de la perte de charge. Ce phénomène est particulièrement bien décrit par Hsiau et al. (2004). Pour remédier à ce problème, on trouve dans la littérature un grand nombre d'études sur des solutions à mettre en œuvre. Dans un premier temps, des travaux ont montré que pour limiter les zones de stagnation l'angle d'ouverture des persiennes par rapport à la verticale devait être le plus faible possible, soit 10° à 20° (Hsiau et al. 1999). De façon contradictoire, les mêmes auteurs ont par ailleurs préconisé un angle de 40° afin de conserver une surface suffisante de la zone d'entrée du gaz dans le lit granulaire permettant de réduire sa vitesse d'écoulement ainsi que celle de colmatage des zones interfaciales.

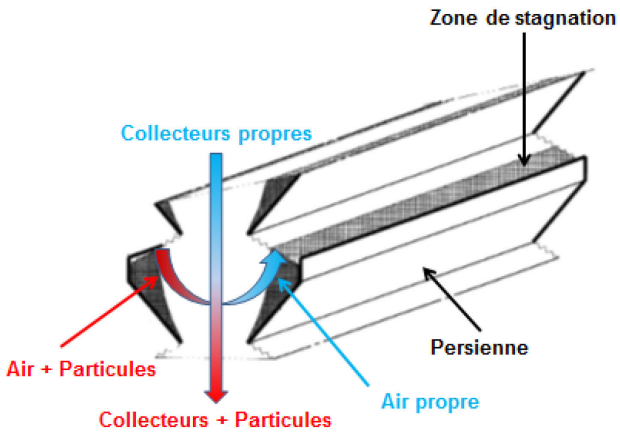


Figure VI-3 Schéma de l'architecture de base d'un MGBF à courants croisés (D'après Hsiau et al. 2004)

Pour respecter cet angle minimum de 40° des persiennes par rapport à la verticale tout en éliminant les zones de stagnation, les recherches se sont la plupart du temps orientées vers le développement d'inserts secondaires à placer au sein du flux de collecteurs. Par la suite, des études d'optimisation globale de la géométrie des MGBF à courants croisés ont souvent été menées en étudiant notamment l'écart vertical entre deux persiennes, leur inclinaison ainsi que celle des parois des inserts secondaires, l'asymétrie de la structure entre l'amont et l'aval du MGBF… Quelques géométries de ce type de MGBF sont données à titre d'illustrations sur la Figure VI-4. Pour plus de précisions sur l'influence des inserts et de leur position sur l'écoulement des collecteurs, le lecteur pourra notamment se référer à : Hsiau et al. (1999), Hsiau et al. (2004), Hsiau et al. (2008), Chen et al. (2016).

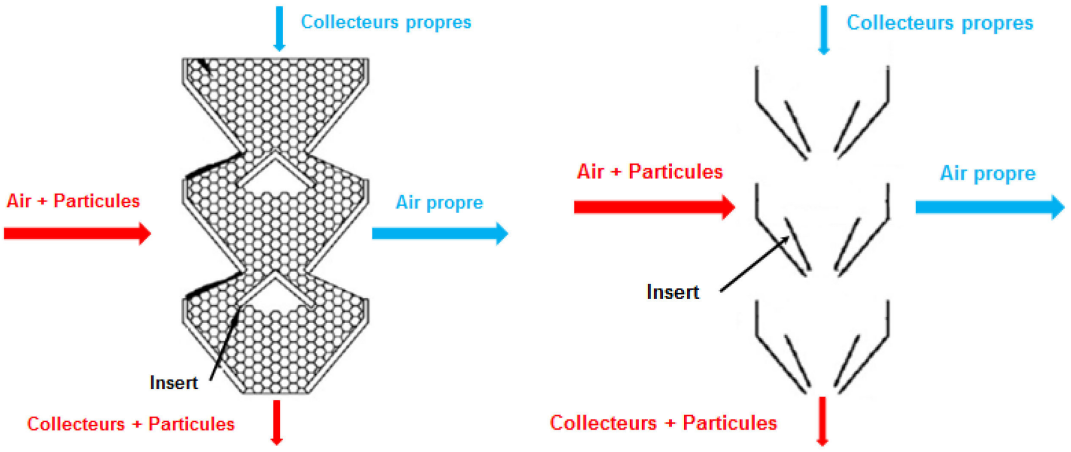


Figure VI-4 Exemple de MGBF à courants croisés : Inserts coniques (Gauche, D'après Chen et al. 2009), Inserts de type persiennes secondaires (Droite, D'après Hsiau et al. 2008)

Les performances de plusieurs types d'installation comportant des MGBF à courants croisés développés sur la base des considérations précédemment décrites ont été étudiées ces dix dernières années. Ce type d'étude étant souvent en lien avec l'épuration de particules issues de la combustion du charbon, les particules utilisées par Chen et al. (2009), sont des cendres microniques de diamètre médian environ égal à 22 µm. Des sables de silice de diamètre compris en 2 et 4 mm ont par ailleurs été choisis comme collecteurs. A noter que les expériences ont été réalisées pour plusieurs vitesses de filtration (20 cm/s à 35 cm/s) et différents débits de collecteurs (300 g/min à 600 g/min). L'installation présente un fonctionnement en régime transitoire au démarrage permettant d'augmenter l'efficacité de filtration par l'accumulation d'un dépôt à l'interface entre le gaz et l'entrée du lit granulaire mais faisant également croître la perte de charge (augmentation de l'ordre de 300 à 400 Pa). Afin de réduire la durée de cette étape transitoire durant laquelle les performances en matière d'efficacité de collecte sont les moins bonnes, les auteurs précipitent le colmatage de l'installation en la faisant fonctionner en lit fixe. La circulation des collecteurs est mise en œuvre seulement lorsque la couche superficielle (interface gaz / lit granulaire) de collecteurs devient totalement obstruée. Ce point critique de colmatage des pores en surface du lit granulaire est caractérisé d'après les auteurs par un point d'inflexion sur les courbes d'évolution temporelle de perte de charge. Bien que la granulométrie des particules soit très différente de celle de PUF utilisées dans notre étude, cette corrélation entre en point d'inflexion marquant une baisse du taux d'augmentation de perte de charge et un colmatage complet des couches superficielles de collecteurs est en accord avec les observations réalisées dans le chapitre 2. Une fois la circulation des collecteurs démarrée, la perte de charge diminue alors sous l'effet de l'évacuation d'une fraction des collecteurs contaminés puis se stabilise amorçant alors le régime permanent durant lequel la collecte des particules est contre balancée par l'écoulement des collecteurs.

Dans cette étude, les auteurs insistent également sur la nécessité de trouver un compromis entre un débit de collecteurs important, générant une perte de charge plus faible, mais nuisant à l'efficacité de collecte du fait de l'évacuation trop rapide des particules déposées et un débit de collecteurs plus faible produisant les effets inverses. Il semblerait d'après cette étude que des efficacités très élevées (>98%) puissent être atteintes vis-à-vis de particules de 10 µm à 20 µm avec des MGBF à courants croisés qu'avec des MGBF à contre-courant. La perte de charge est en revanche significativement plus faible, i.e., de l'ordre de quelques centaines de Pascal. Dans la continuité de ces travaux, Chen et al. (2016) ont notamment étudié l'influence du ratio DR sur l'efficacité de collecte en faisant varier la concentration en particules du gaz à traiter tout en gardant constant son débit ainsi que celui de l'écoulement des collecteurs. Les résultats obtenus sont intuitivement logiques puisque l'efficacité de collecte semble être dans ces conditions une fonction croissante de la concentration de l'aérosol et donc du ratio DR. En effet, l'augmentation de la concentration favorise l'accumulation des particules dans le MGBF et donc l'accroissement de l'efficacité de collecte. Cette deuxième étude est également intéressante car elle fournit des informations sur le comportement de ce type de MGBF vis-à-vis de particules plus fines, i.e., des diamètres compris entre 80 nm et 5,86 µm avec un diamètre médian de 4,64 µm. Grâce à l'analyse des distributions granulométriques en sortie de MGBF, les auteurs ainsi que Paenpong & Pattiya 2013 ont pu rendre compte de certaines difficultés à collecter les particules les plus fines (PM 2,5). Compte tenu de la faible taille des collecteurs (0,2 à 0,4 mm), il semble dès lors préférable d'utiliser des lits fixes pour ce type de particules. En effet, ces derniers affichent une porosité plus faible les rendant plus efficaces vis-à-vis des particules fines.

VI.1.1.3 Système de régénération et de circulation des collecteurs dans les MGBF

Une des conditions à respecter pour l'utilisation de MGBF dans l'industrie est liée à la régénération des collecteurs. Sans cette régénération, leur consommation pourrait s'avérer prohibitive financièrement lorsque les débits de gaz à traiter sont importants (10000 à 20000 m^3/h dans le cas des fumées de métallisation). Les études présentées jusqu'ici ne traitent pas de cet aspect du procédé, les MGBF étant alimentés en continu par des collecteurs neufs. La principale solution envisagée dans la littérature réside dans le transport pneumatique des collecteurs et des particules évacuées vers l'amont du MGBF. Lors de ce transport, le mouvement des collecteurs permet de désolidariser le dépôt de ces derniers sous forme d'agglomérats. Une fois ce transport vers l'amont du MGBF effectué, la séparation entre les agglomérats et les collecteurs peut être réalisée de différentes façons.

La première solution est d'utiliser la différence de vitesse minimum d'air nécessaire à la fluidisation des collecteurs et des agglomérats. Ainsi, en élargissant la section de la conduite transportant les collecteurs et les particules, il est possible de diminuer la vitesse d'écoulement de l'air de façon à ne permettre plus que l'entrainement et le transport vertical des agglomérats. Ces derniers doivent ensuite être évacués vers un dépoussiéreur conventionnel, par exemple à médias fibreux. Simultanément, les collecteurs n'étant plus transportés par le flux d'air s'écoulent par gravité et sont dirigés vers l'entrée du MGBF (Peng 2004).

Bai et al. (2007) ont quant à eux testé des autres séparateurs, i.e., inertiel et cyclonique. Dans le premier cas, le dimensionnement du séparateur implique que seuls les collecteurs et les particules ayant une taille supérieure à une valeur critique de 300 µm, sont séparés par impaction inertielle en ne suivant pas les lignes de courant du flux d'air et en rentrant ainsi en collision avec une surface dédiée à l'impaction. Après cette collision, les particules et les collecteurs arrêtés chutent par gravité vers l'entrée du MGBF. La deuxième technique adoptée par Bai et al. utilise un cyclone dont le diamètre de coupure permet de sélectionner les particules les plus grossières et les collecteurs.

En effet, sous l'action de la force centrifuge, ces derniers rentrent en collision avec les parois du cyclone puis se dirigent par gravité vers l'entrée du MGBF. Les particules n'étant pas retenues par ces deux types de séparateurs sont évacuées vers un dépoussiéreur conventionnel.
Ce type de systèmes de régénération présente un certain nombre d'avantages concernant notamment la maintenance. En effet, le transport pneumatique des collecteurs et des particules collectées et leur séparation par les moyens décrits ci-dessus ne fait intervenir aucun élément mécanique nécessitant une maintenance particulière pour prévenir un éventuel encrassement. Ces systèmes apparaissent d'après la littérature particulièrement adaptés à des particules de grande taille (de l'ordre de la dizaine de micromètres). Ils pourraient en revanche présenter certaines limitations dans le cadre de la filtration de PM 2,5 et plus précisément de particules ultrafines. En effet, comme décrit au chapitre 1, les très grandes forces d'adhésion des PUF sur les médias filtrants sont responsables de l'inefficacité du décolmatage par air comprimé des médias fibreux. Si la totale liberté de mouvement des collecteurs ne rendrait pas totalement inopérant ce type de procédés de régénération dans le cas des MGBF, il est néanmoins possible que les collecteurs demeurent toujours recouverts d'une couche de dépôt provoquant une hausse de la perte de charge lors de leur réintroduction dans le MGBF. Cette régénération imparfaite pourrait ainsi réduire encore d'avantage la durée de vie de l'installation dans le cas de la filtration de PUF et conduire à un changement plus fréquent des collecteurs usagés. Par ailleurs, la présence d'un tel système de régénération accentue l'un des inconvénients majeurs des MGBF, à savoir une grande empreinte au sol pouvant restreindre leur utilisation à des industries produisant de faibles débits d'effluents (Brown et al. 2003).

VI.1.2 Les panneaux à lits filtrants (Panel-Bed)

Alors que les MGBF présentés jusqu'à maintenant se basent sur une circulation continue des collecteurs afin d'évacuer le dépôt et de conserver un état de colmatage acceptable pour maintenir un débit de filtration constant, des procédés fonctionnant sur un mode intermittent ont également été développés. C'est notamment le cas des panneaux à lits filtrants qui seront appelés PB (Panel-Bed) dans la suite du texte. Le principe d'un PB est de former un gâteau de particules en surface d'un lit granulaire lors de la filtration horizontale d'un aérosol afin d'améliorer l'efficacité de collecte puis d'éliminer ce gâteau périodiquement pour restaurer la perte de charge. L'élimination du gâteau se fait hors-ligne par brève injection à contre-sens d'air comprimé. Le fonctionnement des PB est ainsi analogue à celui d'un filtre à manches ou d'un dépoussiéreur à cartouches plissées. La différence entre les PB et ce type de filtres à fibres réside dans le fait que l'injection d'air comprimé provoque l'éjection du gâteau mais aussi des couches superficielles du milieu filtrant du fait de l'indépendance des collecteurs dans un lit granulaire. Les matériaux granulaires retirés après une opération de décolmatage sont remplacés par une circulation gravitaire intermittente de collecteurs comblant l'espace libéré par l'éjection des couches superficielles. Le colmatage de lits granulaires composés de collecteurs monodispersés et de faible diamètre se faisant principalement dans les couches superficielles de collecteurs, les PB reformés après décolmatage sont quasiment identiques aux lits initiaux. Ces différentes étapes, décrites sur la Figure VI-5, peuvent ainsi être répétées indéfiniment.

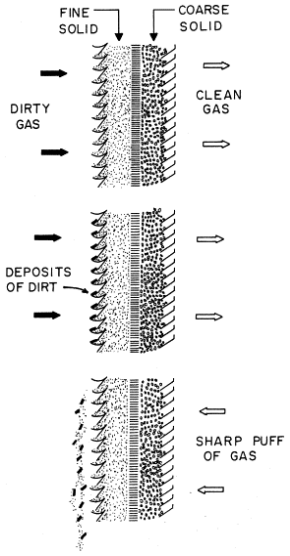


Figure VI-5 Schéma de fonctionnement d'un panneau à lit filtrant

Bien que ce type d'installation se base sur la filtration en surface des particules par une couche de fins collecteurs, on remarque tout de même sur la Figure VI-5 la présence d'une couche secondaire composée de collecteurs de plus grand diamètre. Cette couche secondaire séparée de la première par des persiennes horizontales permet d'éviter la migration des collecteurs les plus fins vers l'aval du PB lorsque les vitesses superficielles sont élevées. Pour une description complète de ce procédé de filtration, le lecteur pourra se référer à une série de quatre articles issus de la même équipe de recherche : Lee et al. (2005), Rodon et al. (2005), Wu et al. (2005), Squires (2005).

Les performances de ces panneaux filtrants ont été évaluées vis-à-vis de différents types de particules et dans des conditions variées de température (150°C à 800°C) potentiellement rencontrées en aval des procédés de combustion (Rodon et al. 2005). Les PB ont ainsi montré globalement une très bonne aptitude à la filtration de particules de cendre ou de poussières de cimenterie de taille micrométrique (diamètres médians compris entre 11 µm et 38 µm). En effet, l'efficacité de collecte des particules microniques moyennée sur le temps total de fonctionnement du procédé s'est avérée dans la plupart des cas supérieure à 99% pour une perte de charge maximale avant décolmatage d'environ 2200 Pa.

Il a toutefois été remarqué que certains paramètres pouvaient compromettre ces bonnes performances. Ainsi, lors d'essais à température ambiante, les auteurs ont noté que, pour une vitesse de filtration donnée, l'utilisation de collecteurs de diamètre trop important (supérieur à 1,4 mm dans cette étude) pouvait empêcher la formation d'un gâteau de filtration en surface du lit granulaire. Ce phénomène est lié à une trop faible cohésion des particules entre elles et avec la surface des collecteurs. En effet, au-delà d'un certain diamètre de pore (lié à la taille du collecteur), le dépôt n'est plus assez résistant pour former les arches initiales en travers des pores servant de support à la croissance d'un gâteau. Il apparait donc d'après Rodon et al. (2005) que ce diamètre critique de collecteur est propre à chaque couple de matériaux particules/collecteurs. Ce diamètre dépend également de la vitesse superficielle du gaz exerçant une force de trainée plus ou moins importante sur les particules déposées. Les conditions de température et de pressions semblent également jouer un rôle important dans l'intensité des forces d'adhésion des particules entre elles. Ces limitations ont été particulièrement observées lors d'expériences de filtration par PB de fumées de silice amorphe issues des fours produisant du ferrosilicium (mélanges d'agglomérats submicroniques et microniques).

En effet, ces particules étant bien plus fines et de composition chimique différente des cendres ou des poussières de cimenterie, les auteurs ont observé expérimentalement qu'il était nécessaire de réduire la vitesse de filtration afin de pouvoir former un dépôt superficiel et limiter la pénétration des particules dans la profondeur du lit granulaire. La plus faible taille de ces particules conduit également à une masse collectée moins importante pour une augmentation de perte de charge donnée et donc à un décolmatage plus fréquent. A titre d'exemple, le temps entre deux décolmatages était d'environ 5 min pour les poussières de cimenteries contre 1,5 min pour les fumées de silice.
Malgré une efficacité de collecte comparable à celle des médias fibreux, cette faible durée de fonctionnement entre deux décolmatages hors ligne joue en défaveur de l'utilisation des PB pour le traitement des débits importants émis par les procédés de métallisation. Par ailleurs, l'efficacité de collecte des PUF par diffusion brownienne étant une fonction décroissante de la vitesse superficielle et du diamètre des collecteurs, il pourrait être nécessaire de diminuer drastiquement l'un de ces deux paramètres pour former un dépôt en surface et limiter la pénétration des PUF dans le lit granulaire. La diminution de la vitesse superficielle conduirait, à débit constant, à adopter la même solution que pour les médias fibreux actuels, i.e. augmenter la surface de filtration. La diminution de la taille des collecteurs ferait, quant à elle, augmenter la perte de charge du PB. Ces deux cas mèneraient ainsi à un accroissement des coûts d'exploitation, soit par achat d'une installation de dimensions plus importantes, soit du fait de plus grandes dépenses énergétiques. Si de telles dispositions n'étaient pas prises, il serait nécessaire d'augmenter l'intensité du décolmatage par air comprimé afin de renouveler une plus grande fraction de la profondeur du lit. Ceci conduirait alors à une hausse de la consommation de matériaux granulaires qui pourrait être rédhibitoire en matière de coûts et de gestion des déchets. En effet, d'après Rodon et al. (2005), ce type de dispositifs souffre encore d'un manque de procédés permettant de recycler in-situ les collecteurs usagés.

VI.1.3 Les lits granulaires bicouches

Les différentes techniques de filtration d'aérosols présentées jusqu'à maintenant sont basées essentiellement sur la mise en place d'un système de décolmatage efficace, continu (MGBF) ou intermittent (panneaux à lits filtrants). D'autres études ont été réalisées selon une approche différente consistant à minimiser le plus possible les effets du colmatage (i.e. l'augmentation de la perte de charge) tout en conservant une efficacité de collecte suffisante pour les applications industrielles ciblées. L'un des moyens prometteurs partiellement étudié dans la littérature consiste à superposer deux couches de collecteurs de diamètres très différents et décroissants dans la direction de l'écoulement. En effet, dans cette configuration la première couche moins efficace est supposée servir de préfiltre en piégeant dans sa profondeur une majorité de particules. Les particules non-retenues par la première couche sont ainsi collectées majoritairement en surface de la deuxième composée de collecteurs très fins. Cette deuxième couche permet ainsi d'atteindre de très hautes efficacités. Grâce à un diamètre de collecteur plus important, la première couche conduit à une augmentation de la capacité de rétention de l'ensemble du système, i.e. de la quantité de particules pouvant être collectée avant que le dépôt ne se fasse superficiellement. Ce type de configuration permet donc d'obtenir, en théorie, un lit granulaire présentant une plus faible croissance de la perte de charge en fonction de la masse collectée que son équivalent monocouche en termes d'efficacité. Yang & Zhou (2007), Shi et al. (2015) puis Tian et al. (2016) ont mené un certain nombre d'études expérimentales sur le sujet confirmant ces bonnes performances théoriques en matière d'efficacité et de perte de charge. En termes de granulométrie des particules, les travaux de Shi et al. sont les plus proches des nôtres et donc les plus instructifs de par l'utilisation de particules submicroniques avec un diamètre médian proche de 500 nm.

Shi et al. ont mené leur expérience à une vitesse superficielle de 10 cm/s avec un lit granulaire bicouches dont les couches prises séparément possèdent les caractéristiques suivantes:

Tableau VI-1 Caractéristiques individuelles des couches du lit granulaire bicouches utilisé par Shi et al. (2015)

Caractéristiques	Première couche (collecteurs grossiers)	Deuxième couche (collecteurs fins)
Diamètre des collecteurs (mm)	0,3 – 1	0,074 – 0,1
Profondeur (cm)	15	0,3
Efficacité de collecte moyenne (%)	89,91 (moyenne sur 50 min)	96,24 (moyenne sur 110 min)

En comparant ces performances individuelles avec celles du lit bicouche dans son ensemble, Shi et al. ont pu ainsi observer que son efficacité globale est logiquement plus importante (99,835%) et que la perte de charge est initialement majoritairement induite par la deuxième couche. Avec le colmatage, on observe le comportement inverse, à savoir que l'évolution de la perte de charge est principalement gouvernée par celle de la première couche. La perte de charge évolue ainsi faiblement du fait de collecteurs plus grossiers dans la première couche que dans la deuxième qui favorisent la filtration en profondeur (Figure VI-6).

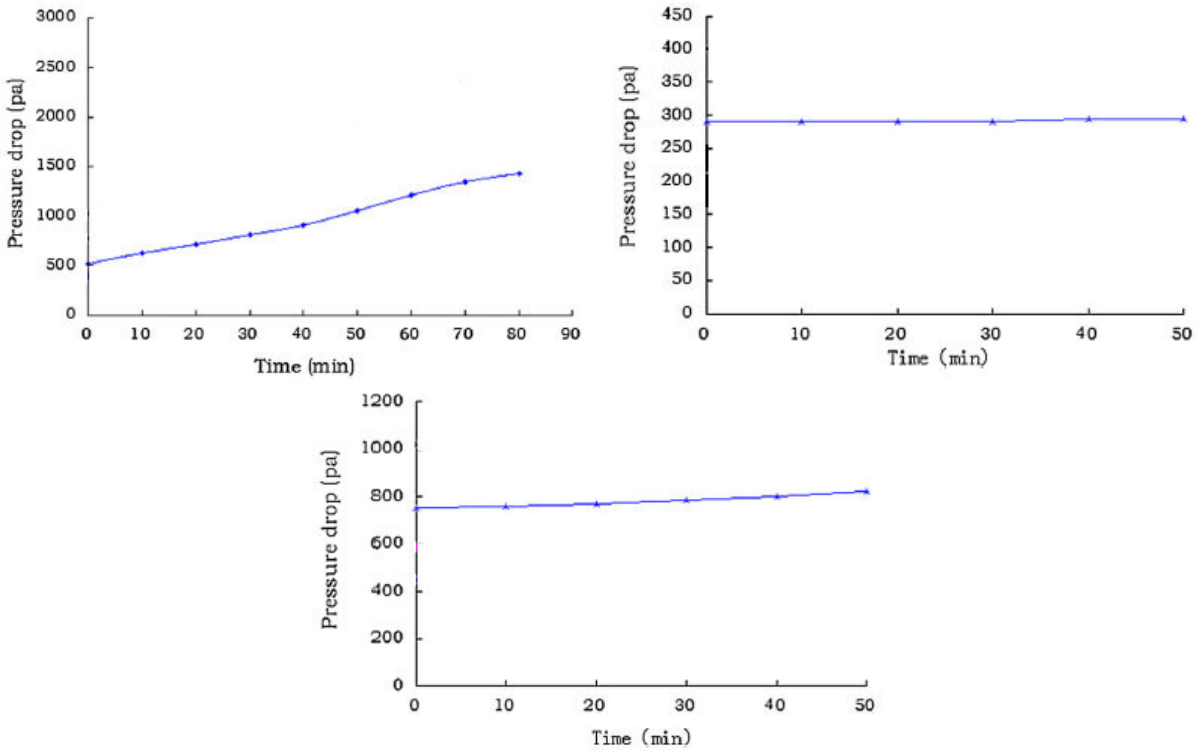


Figure VI-6 Evolution de la perte de charge au cours du temps : Deuxième couche seule – En-haut à gauche, Première couche seule – En-haut à droite, Lit granulaire bicouche – En bas (D'après Shi et al. (2015))

Il convient néanmoins de noter que les comparaisons de la Figure VI-6 représentent des états de colmatage peu avancés étant donné la faible concentration en particules, de l'ordre de 180 000 particules / cm^3, et la profondeur importante de la première couche (15 cm). En étudiant les données expérimentales d'un colmatage d'une durée de 17 heures, on s'aperçoit que la perte de charge de l'ensemble augmente rapidement durant les premières heures atteignant une valeur plafond de 3900 Pa puis diminue en même temps que l'efficacité.

Cette diminution de l'efficacité et de la perte de charge est attribuée par les auteurs à un phénomène de perforation du dépôt en surface du lit granulaire ce qui est cohérent avec les observations faites au chapitre 2 et les études de Rodon et al. (2005) et Wu et al. (2005). Cela montre également les limites de cette configuration de lit granulaire bicouches et l'importance de la taille des collecteurs. En effet, utiliser des collecteurs de faible diamètre dans la première couche limite le phénomène de filtration en profondeur. La configuration de Shi et al. semble ainsi s'apparenter très rapidement à un lit conventionnel (monocouche) du fait de la grande profondeur de la première couche. La deuxième, constituée de collecteurs plus fins, est donc finalement très peu utile en dehors de l'état initial car l'efficacité de la première couche, initialement d'environ 90%, augmente rapidement avec le colmatage.

A la lumière des résultats de Shi et al., il apparait que l'utilisation de lits granulaires bicouches est prometteuse puisqu'ils permettent réellement de limiter l'augmentation de la perte de charge en cours de colmatage en comparaison de lits monocouches d'efficacité initiale identique. Il est cependant nécessaire, pour tirer pleinement avantage de ce type de lits granulaires, d'optimiser l'organisation des couches. Ainsi, les diamètres de collecteurs et les épaisseurs de couches doivent être choisis de manière à obtenir le meilleur compromis permettant de respecter à la fois les contraintes d'efficacité de collecte et de perte de charge mais aussi d'encombrement lorsque les débits à traiter sont importants.

Bien que les lits granulaires bicouches permettent d'augmenter la durée de fonctionnement, ces lits étant fixes, il est malgré tout nécessaire de procéder à un décolmatage afin de rétablir une perte de charge acceptable proche de celle de l'état initial. Pour y parvenir, Yang & Zhou (2007) ont développé un système de régénération hors-ligne des lits granulaires bicouches en procédant à leur fluidisation. La fluidisation des deux couches pendant quelques dizaines de secondes permet de remettre en suspension puis de réentrainer en dehors du lit granulaire les particules qui y étaient retenues. Le flux d'air permettant la fluidisation et les particules sont ensuite évacués vers un filtre à manches. Afin d'éviter que les collecteurs des deux couches ne se mélangent durant la fluidisation et n'en forment plus qu'une seule, les auteurs ont utilisé des matériaux de densité suffisamment différente (i.e. densité la plus faible pour les collecteurs de la première couche) pour que la première couche surnage au-dessus de la deuxième une fois le flux d'air de fluidisation stoppé. Pour que cette méthode de régénération fonctionne de façon optimale, il est nécessaire que les collecteurs des deux couches possèdent la même vitesse minimum de fluidisation. Cette technique de décolmatage complique ainsi fortement le dimensionnement des installations car, une fois le meilleur compromis trouvé en termes de diamètres de collecteurs et d'épaisseurs de couches, il est nécessaire de rechercher, si elle existe, une combinaison de matériaux conférant aux collecteurs de chaque couche une vitesse minimum de fluidisation quasiment identique. Par ailleurs, ces études ont montré que ce type de régénération ne permet pas d'évacuer totalement les particules du lit granulaire. Il est donc nécessaire après un certain nombre de cycles de colmatage/décolmatage de procéder au remplacement des collecteurs usagés.

VI.1.4 Récapitulatif

Cet état de l'art montre qu'un certain nombre de dispositifs et de techniques basés sur des lits granulaires ont été développés pour remplacer avantageusement les filtres à fibres dans certaines situations industrielles. La problématique la plus courante dans la littérature est le cas de la filtration de gaz à très haute température (environ 800°C) contenant des particules le plus souvent de taille très supérieure à 1 µm. Ces différents dispositifs ont pour principal but d'accroitre la durée de fonctionnement des lits granulaires avant de devoir renouveler les collecteurs. Ceci est réalisé dans la plupart des cas par des opérations de décolmatage en continu (MGBF) ou intermittentes (Panneaux à lits filtrants (PB)). Ces deux types de solutions consommant une quantité importante de collecteurs, des techniques de nettoyage et de réutilisation des collecteurs en cycle fermé ont dû être mises au point. Le plus souvent cela est effectué au moyen d'un flux d'air comprimé à température ambiante. Les particules séparées des collecteurs sont ensuite évacuées vers des dépoussiéreurs terminaux à médias fibreux assurant leur collecte définitive. Dans ces deux dispositifs, le lit granulaire permet ainsi de concentrer les aérosols filtrés par les dépoussiéreurs terminaux afin de diminuer leurs dimensions mais surtout de les protéger des hautes températures. Sachant cela, ce type d'installations ne pourrait ainsi pas convenir à la filtration des PUF puisque la raison de cette étude est précisément de trouver une alternative aux médias fibreux.
D'autres solutions comme les lits bicouches permettent d'étendre la durée de fonctionnement des lits granulaires en utilisant, en parallèle d'une méthode de décolmatage par fluidisation, une superposition de deux couches de collecteurs de diamètres différents permettant de mieux repartir la masse collectée dans la profondeur du lit. Si le décolmatage par fluidisation est inadapté à la filtration des PUF en raison de la nécessité d'utiliser un dépoussiéreur terminal pour piéger les particules extraites du lit granulaire, le principe d'un lit multicouche apparait quant à lui prometteur.

Par conséquent, la suite de ce chapitre est en partie consacrée à l'étude et à l'adaptation d'un lit granulaire multicouche appliqué à la filtration des PUF. Par ailleurs, les techniques de décolmatage présentées précédemment n'étant pas adaptées à ce type de particules, une autre méthode est également proposée. Enfin, une réflexion est amorcée à la fin de ce chapitre quant à la forme géométrique à donner aux lits granulaires pour rendre possible une utilisation industrielle, i.e. pour respecter les contraintes d'encombrement et de surface de filtration qui influencent indirectement la perte de charge.

VI.2 Utilisation d'un lit granulaire multicouche pour la filtration de PUF

Les lits granulaires multicouches présentés jusqu'à maintenant sont composés uniquement de deux couches de collecteurs dont les diamètres semblent majoritairement dictés par le système de décolmatage par fluidisation. D'après les différentes études, il apparait que les exigences en termes d'efficacité aient été majoritairement satisfaites en construisant une première couche de grande épaisseur (15 cm). Au-delà des problèmes d'encombrement et de consommation de collecteurs que pourraient causer les dimensions de cette première couche dans des installations de grande taille, cette construction est loin d'être optimale sur le plan de la répartition de la masse collectée et donc de la durée de fonctionnement entre deux décolmatages. En effet, l'efficacité de collecte étant une fonction décroissante de la taille des collecteurs, l'idéal serait de construire un lit granulaire présentant un gradient de diamètres de collecteurs qui soit plus progressif afin de colmater en premier lieu les couches les plus profondes du lit granulaire. En plus du diamètre des collecteurs, la profondeur des différentes couches est également un paramètre important. Une couche de trop grande épaisseur induirait très tôt au cours du colmatage (selon la taille des collecteurs) une

importante différence d'efficacité avec les couches en aval qui nuirait à la bonne répartition du dépôt au sein du lit granulaire. Il apparait par conséquent que le choix d'une configuration idéale de lit multicouche en matière de répartition du dépôt est un problème complexe dépendant d'un nombre important de variables régissant l'efficacité relative d'une couche par rapport à une autre : nombre de couches (i.e., nombre de diamètres de collecteurs), profondeur des couches et diamètre des collecteurs. Parallèlement à l'objectif de répartition homogène de la masse collectée dans la profondeur, le lit multicouche idéal doit aussi répondre aux contraintes usuelles d'efficacité de collecte, de perte de charge et d'encombrement. A la vue du nombre important de paramètres à prendre en compte, certains ont dû être fixés a priori sur la base de considérations pratiques. Ainsi, la profondeur du lit granulaire multicouche a été fixée à environ 3 cm, soit une valeur très proche de celle des plis des médias fibreux utilisés dans les dépoussiéreurs à cartouches. A titre d'exemple, les cartouches Ultraweb® et Fibraweb® commercialisées par Donaldson® pour la filtration des PUF présentent une épaisseur de pli et donc de cartouche d'environ 3,8 cm. Cette profondeur du lit permet de mener des essais sur des structures dont l'encombrement est a priori réaliste. Afin de raffiner le gradient de diamètres de collecteurs en comparaison des lits bicouches de la littérature, une troisième couche a été utilisée dans cette étude. La profondeur de chaque couche a été fixée à environ 1 cm (11 mm) ce qui permet dans toutes les configurations de limiter les effets de bords dans les différents étages compte tenu de la plage de diamètres de collecteurs étudiée (diamètre maximum de 1,6 mm).

Afin de valider le principe d'extension de la durée de fonctionnement entre deux décolmatages au moyen d'un lit granulaire tricouche, des expériences de colmatage par des fumées de métallisation ont été réalisées sur un lit, dit amélioré, comportant trois étages chacun rempli de billes en acier inoxydable de diamètre décroissant avec la profondeur : 1 mm, 0,8 mm et 0,5 mm. A titre de comparaison, l'évolution de l'efficacité et de la perte de charge a également été suivie dans une configuration dite conventionnelle où les trois étages contenaient des billes de 0,5 mm de diamètre. Pour ces essais le protocole expérimental est quasi-identique à celui utilisé pour le suivi du colmatage des lits monocouches présenté au chapitre 2. L'unique différence provient de l'ajout, en aval et l'un en dessous de l'autre, de deux étages indépendants supplémentaires (configurations présentés sur la Figure VI-7) et donc de la mesure cyclique de la concentration en aval de ces derniers en plus de celles effectuées en amont et en aval du premier étage. La perte de charge est quant à elle suivie pour ces deux étages supplémentaires de la même manière que pour le lit monocouche, à savoir via des capteurs de pression différentielle connectés à l'amont et à l'aval de chaque étage et reliés à une centrale d'acquisition. Les résultats de ces deux expériences en termes de répartition de la masse collectée sont représentés sur la Figure VI-7, ceux d'efficacité et de perte de charge sur la Figure VI-8.

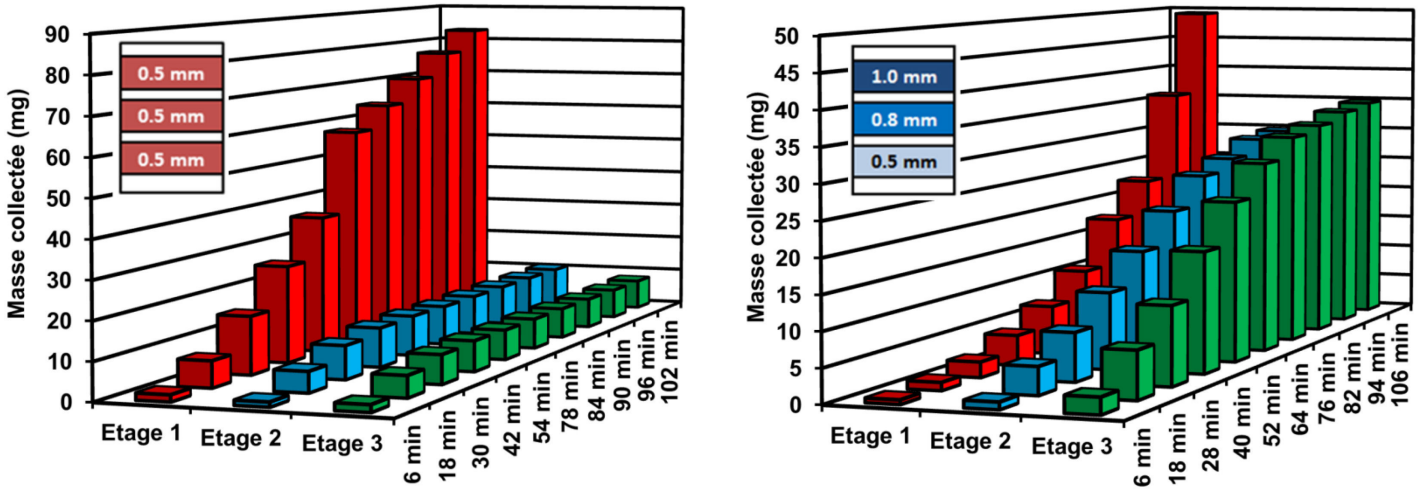


Figure VI-7 Répartition de la masse collectée dans les trois couches des lits conventionnels (Gauche) et amélioré (Droite)

Grâce à la Figure VI-7, il apparait clairement que les étages les plus en profondeur sont colmatés en premier lors du colmatage du lit granulaire amélioré. Ce comportement est ainsi contraire à celui du lit granulaire conventionnel dont le premier étage contient la plus grande fraction de la masse collectée durant toute la durée du colmatage. L'utilisation d'un gradient plus fin de diamètres de collecteurs permet ainsi de faire en sorte qu'une plus grande fraction de la profondeur du lit granulaire soit effectivement utile à la collecte des PUF et donc de retarder l'obstruction des couches de collecteurs superficielles.

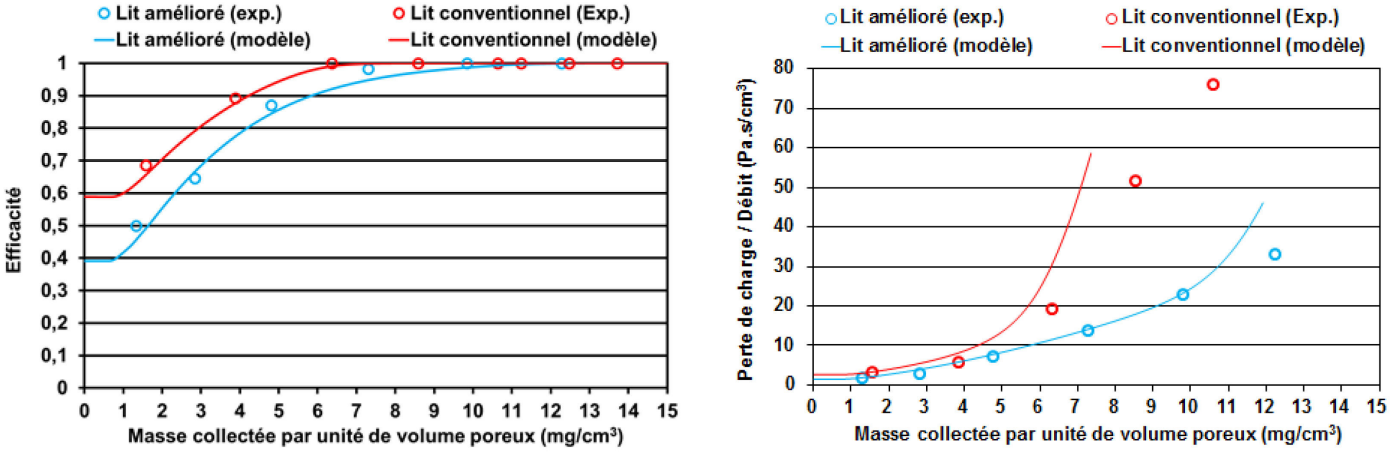


Figure VI-8 Evolution de l'efficacité (Gauche) et de la perte de charge (Droite) en fonction de la masse collectée des lits granulaires conventionnel et amélioré

L'efficacité de collecte étant une fonction décroissante du diamètre des collecteurs, la Figure VI-8 montre logiquement une efficacité initiale significativement plus faible dans le cas du lit granulaire amélioré. Cependant, cet écart d'efficacité est rapidement comblé. Il passe en effet d'environ 10% pour une masse collecté de 4 mg/cm^3 à 0% pour une masse collectée de 7 mg/cm^3, moment à partir duquel l'efficacité atteint quasiment 100%. On constate également que la perte de charge du lit granulaire amélioré est plus de deux fois plus faible que celle du lit granulaire conventionnel lorsque l'efficacité est dans les deux cas d'environ 100 %. La Figure VI-8 montre finalement que pour une même masse collectée la perte de charge du lit granulaire amélioré est significativement plus faible dès le début du colmatage et que cette différence ne cesse de croitre au cours du procédé de filtration. D'après ces résultats, l'utilisation d'un gradient de collecteurs apparait comme très prometteuse pour augmenter la durée de fonctionnement des lits granulaires entre deux décolmatages. Néanmoins, on remarque que la combinaison de diamètres du lit amélioré n'est pas optimale pour deux raisons principales. La première est un déficit d'efficacité initiale trop important malgré une amélioration rapide des performances avec le colmatage. La deuxième concerne la répartition de la masse collectée. En effet, la Figure VI-7 montre que le deuxième étage ne contient jamais au cours du colmatage une masse de particules au moins égale à celle du troisième étage. Ceci témoigne de la trop faible différence d'évolution de l'efficacité entre les deux premières couches. Le premier étage devient ainsi trop précocement efficace en comparaison du deuxième.

VI.2.1 Détermination de la combinaison optimale de diamètres de collecteurs

D'après les résultats de ces essais préliminaires, il a été décidé d'entreprendre une démarche en deux étapes (analyse puis optimisation multicritère) pour déterminer la combinaison de diamètres de collecteurs optimale permettant d'utiliser au maximum la profondeur du lit granulaire tout en garantissant la meilleure efficacité de collecte possible.

Cette démarche ayant pour but d'allonger le plus possible la durée de la filtration en profondeur qui est plus avantageuse en termes d'augmentation de perte de charge, le modèle présenté au chapitre 5 a pu être adapté au cas des lits multicouches et utilisé pour s'affranchir d'un nombre prohibitif d'expériences. A titre de rappel (cf. chapitre 2 et 5), la filtration en profondeur peut se décomposer en deux phases A et B s'étendant du démarrage du procédé de filtration à un état de colmatage quasi-total des pores de surface correspondant expérimentalement à une efficacité proche 100%. Une valeur d'efficacité du premier étage égale à 99,99 % a ainsi été choisie comme critère d'arrêt des modélisations. La validité du modèle vis-à-vis d'un lit amélioré a par ailleurs pu être vérifiée en comparant ses prévisions avec les résultats des essais préliminaires de la Figure VI-8.
Le colmatage de lits granulaires améliorés a ainsi été prédit grâce au modèle pour un ensemble de combinaisons de diamètres de collecteurs. La taille de ces derniers est comprise entre 0,2 mm et 1,6 mm avec comme condition qu'un étage donné ne puisse pas être rempli de collecteurs plus grands que celui qui le précède. En choisissant un pas de 0,1 mm pour le diamètre des collecteurs, le nombre de configurations de lits améliorés à simuler s'élève à 455.

- **Analyse multicritère**

La première étape menant à la détermination de la combinaison de diamètres de collecteurs optimale est appelée analyse multicritère et consiste en la comparaison des 455 configurations de lits améliorés selon trois critères devant être maximisés : la masse collectée par unité de volume poreux au moment où l'efficacité du premier étage atteint le critère d'arrêt défini ci-avant (C_1, capacité de rétention), l'inverse de l'augmentation de perte de charge correspondante (C_2) ainsi que l'efficacité moyenne calculée sur cette même période (C_3, masse collectée/masse générée). Cette analyse a été réalisée en comparant 2 à 2 toutes les combinaisons selon le principe suivant :
Soient 2 combinaisons X et Y, X est non-dominée par Y si :
- Tous les critères de X sont supérieurs ou égaux à tous les critères de Y.
- Au moins un critère de X est meilleur que le critère équivalent de Y.
A chaque combinaison est affecté un score appelé indice de domination (χ). L'indice d'une combinaison donnée est incrémenté de 1 à chaque fois que cette dernière est dominée. Un exemple graphique de la mise en œuvre de cette première étape est donné sur la Figure VI-9:

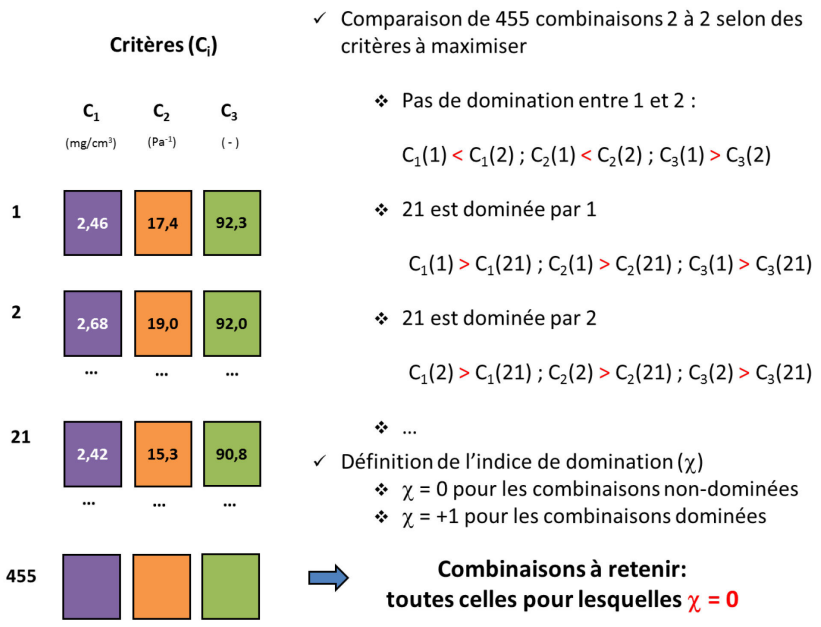


Figure VI-9 Exemple graphique de la mise en œuvre de l'analyse multicritère

En retenant uniquement les configurations qui ne sont jamais dominées par une autre, i.e., dont l'indice de domination χ est nul, cette approche permet d'effectuer assez rapidement un premier tri sans subjectivité quant à l'importance d'un critère par rapport à un autre. A la fin de cette analyse multicritère, seules 61 configurations ont été retenues sur les 455 de départ, représentées sur les domaines de Pareto (Figure VI-10). Bien que cette analyse permette d'effectuer un premier tri conséquent, il convient de préciser que d'autres choix de critères auraient pu être faits et mener à une sélection de combinaisons différentes. Toutefois, il a semblé dans cette étude que les critères choisis sont les plus pertinents pour rendre compte de l'évolution des performances d'un lit granulaire tricouches en cours de colmatage. En effet, les trois critères définis permettent de prendre en compte à la fois la durée de la phase de filtration en profondeur (C_1), l'évolution de la perte de charge (C_2) ainsi que celle de l'efficacité de collecte (C_3).

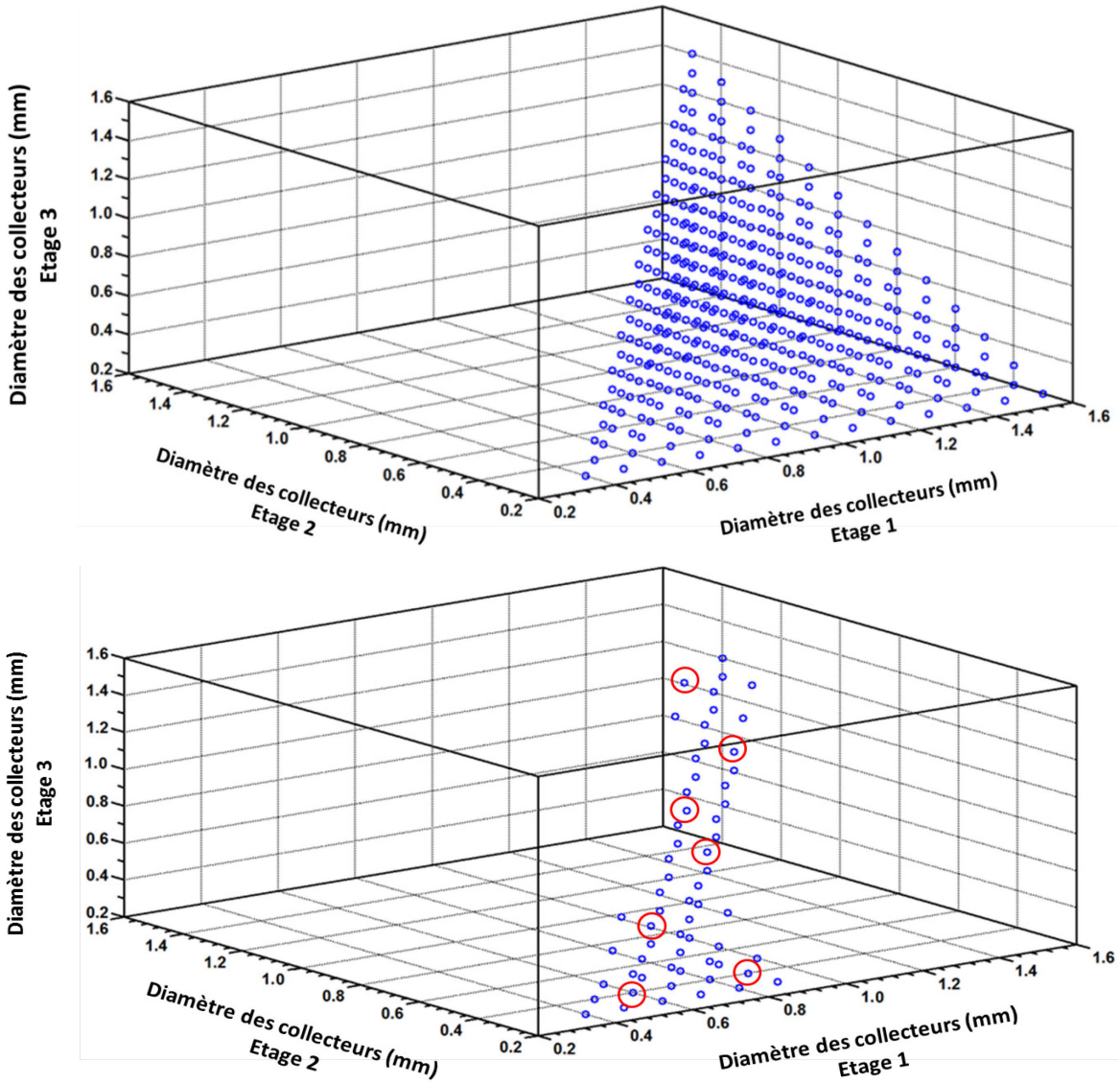


Figure VI-10 Domaine de Pareto du domaine avant analyse multicritère (455 combinaisons, En-haut) et après analyse multicritère (61 combinaisons, En-bas)

- **Optimisation multicritère : méthode de Rough-sets**

Une fois l'étape d'analyse terminée, une démarche complémentaire d'optimisation multicritère a été mise en œuvre au moyen de la méthode des rough-sets (Renaud 2012). Cette deuxième étape permet de prendre en compte la prépondérance d'un critère par rapport à un autre et ainsi d'obtenir théoriquement la combinaison de diamètres de collecteurs optimale. L'application de cette méthode commence tout d'abord par la sélection d'un échantillon de configurations, habituellement entre 5 et 7, parmi celles retenues après l'analyse multicritère. Cet échantillon doit être représentatif de l'ensemble de la population étudiée. Pour ce faire, il doit être choisi de façon à être reparti le plus équitablement possible simultanément sur le domaine (Figure VI-10) et le front de Pareto post-analyse multicritère. Le front de Pareto reprend le même principe que le domaine de Pareto. La différence entre les deux réside dans la représentation des trois critères au lieu des trois paramètres d'entrée (i.e., les différents diamètres de collecteurs) sur les axes du graphique.
Ces combinaisons choisies sont alors classées manuellement selon les trois critères définis de la meilleure à la moins bonne d'après le jugement d'un ou plusieurs experts. Elles sont ensuite comparées 2 à 2 par ordre décroissant de préférence pour chacun des critères. Si un critère d'une combinaison est meilleur que le même critère d'une combinaison moins bien classée par l'expert, alors la valeur 1 est affectée à ce critère. Dans le cas contraire, ce dernier obtient la valeur de 0. A partir de ces comparaisons, des règles binaires de préférence sont obtenues (par exemple 101 ou 110 si il y a trois critères). En répétant ces comparaisons 2 à 2, mais cette fois-ci par ordre croissant de préférence, il est alors possible d'obtenir les règles binaires de non-préférence. Les règles binaires apparaissant simultanément comme des règles de préférence et de non-préférence sont ensuite éliminées. Celles restantes sont appliquées à la population entière retenue après l'analyse multicritère en comparant à nouveau toutes les combinaisons 2 à 2 selon le même principe que pour l'échantillon classé par les experts. Si une comparaison de deux combinaisons mène à une règle de préférence, le score de la première est incrémenté de 1 et celui de la deuxième est décrémenté de 1. Dans le cas où la comparaison mène à une règle de non-préférence, on compte alors -1 pour la première combinaison et +1 pour la deuxième. Ce décompte permet de classer les différentes combinaisons de diamètres de collecteurs en fonction de leur score, le plus haut correspondant à celle qui devrait être choisie.

De la même manière que pour l'analyse multicritère, un exemple graphique illustre la mise en œuvre de la méthode des rough-sets (Figure VI-11) :

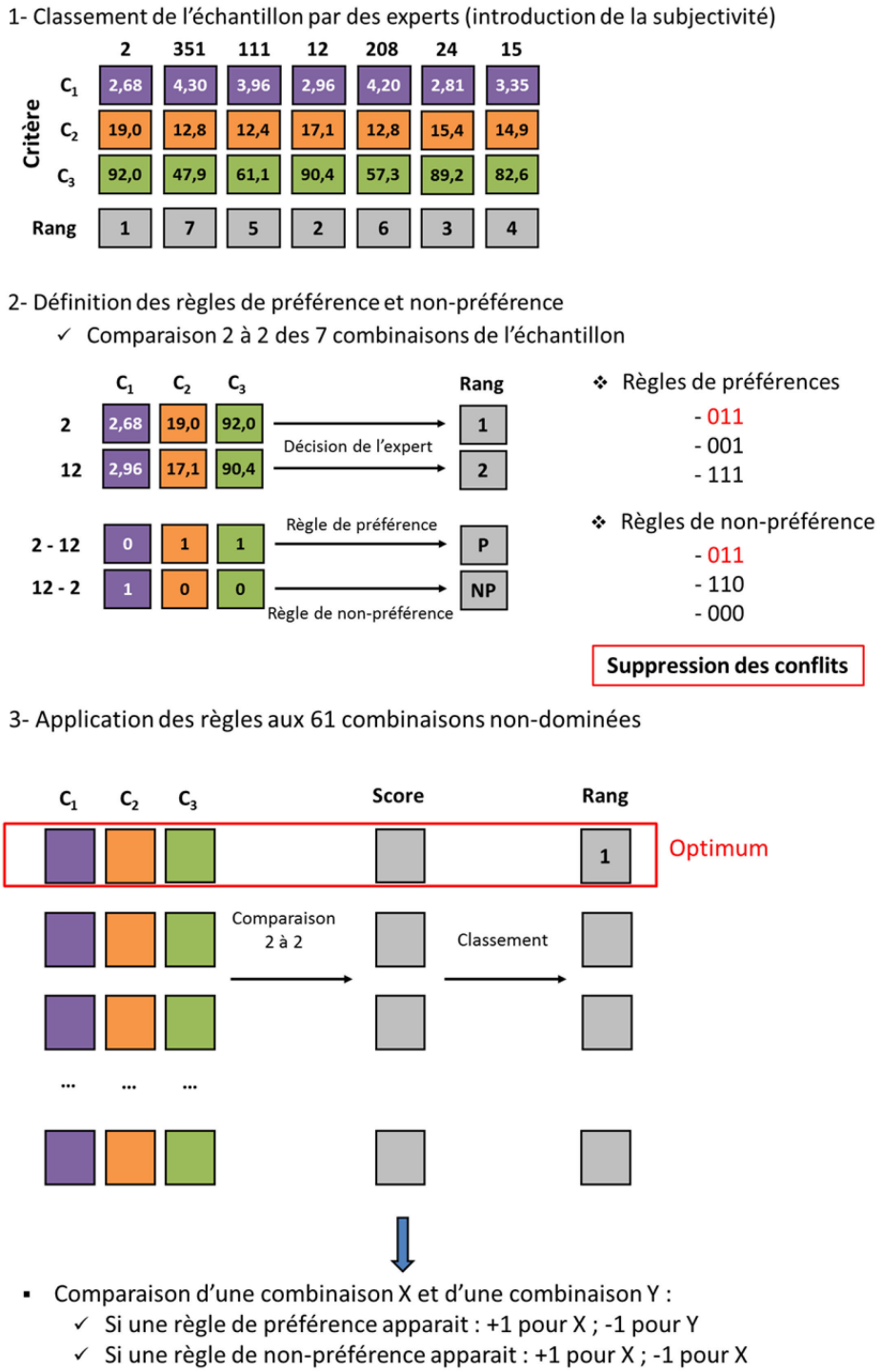


Figure VI-11 Exemple graphique d'application de la méthode des rough-sets aux combinaisons retenues par l'analyse multicritère

Le classement par quatre experts d'un même échantillon de 7 combinaisons selon les critères définis précédemment a fait ressortir 2 combinaisons théoriquement optimales (Figure VI-12). D'après ces résultats, il apparait que seuls de faibles diamètres de collecteurs ont été retenus si l'on considère la gamme étudiée (0,2 mm à 1,6 mm). Ceci peut être attribué au fait que les experts ont surement privilégié dans leur classement des combinaisons présentant une grande efficacité moyenne de collecte. Le choix des critères peut aussi avoir favorisé l'apparition de ces résultats. En effet, les critères sur la masse collectée et sur l'efficacité moyenne n'étant pas rigoureusement indépendants, il est possible que la recherche d'un maximum simultané pour ces deux critères lors du classement des experts ait accordé un poids plus important aux performances en termes d'efficacité de collecte.

Combinaisons optimales			
Expert	$d_{c,1}$ (mm)	$d_{c,2}$ (mm)	$d_{c,3}$ (mm)
#1	0,4	0,3	0,2
#2	0,6	0,4	0,2
#3	0,6	0,4	0,2
#4	0,4	0,3	0,2

Figure VI-12 Combinaisons optimales de diamètres de collecteurs obtenues à partir des classements de 4 experts

VI.2.2 Apport des 2 combinaisons optimales

Afin de vérifier si les combinaisons obtenues par cette démarche d'optimisation multicritère représentent un progrès significatif, les résultats prédits par le modèle de colmatage pour ces deux combinaisons optimales ont été comparés à ceux obtenus expérimentalement lors des essais préliminaires présentés sur la Figure VI-7 et la Figure VI-8.

D'après la Figure VI-13 (coin inférieur gauche), on remarque qu'en termes de répartition de la masse collectée, la combinaison des experts n°1 et n°4 (0,4 mm/0,3 mm/0,2 mm) obtenue en privilégiant le critère d'efficacité lors du classement ne permet pas de profiter de l'effet du gradient de diamètres de collecteurs. En effet, les courbes représentant les fractions de la masse totale collectée dans les étages divergent fortement les unes des autres. Ce comportement est lié au fait que les collecteurs de la première couche ne présentent pas un écart de diamètre suffisant avec ceux des couches en aval pour permettre le colmatage des strates les plus en profondeur dès le début du procédé de filtration. Du fait de cette répartition limitée du dépôt, les allures des courbes de fractions de la masse totale collectée dans les différents étages pour cette configuration sont identiques à celles du lit conventionnel (Figure VI-13 (coin inférieur droit)). Cette mauvaise répartition entraine ainsi une fin de la phase de filtration en profondeur pour une masse totale collectée plus faible en comparaison des deux autres configurations présentées sur la Figure VI-13 (En-haut). Pour ces dernières, on constate que l'augmentation de l'écart des diamètres de collecteurs d'une couche à une autre permet d'obtenir un comportement inverse. En effet, les courbes de fractions de la masse totale collectée dans les différents étages convergent et finissent par se croiser avant de diverger dès lors que le premier étage commence à assurer la quasi-totalité de la filtration. Le cas idéal du point de vue de la répartition du dépôt serait une configuration pour laquelle ces courbes se croiseraient en un point unique au moment exact de la fin de la phase de filtration en profondeur. En effet, une telle configuration signifierait que chacun des trois étages a participé à part égale (environ 33%) à la collecte des particules entre deux décolmatages et que la profondeur utile du lit granulaire a été

maximisée (i.e., capacité de rétention maximale). De ce point de vue, la seconde configuration issue de la méthode des rough-sets (0,6 mm/0,4 mm/0,2 mm), apparait donc comme une bien meilleure solution que la première puisque les courbes de fractions de la masse collectée des différents étages se croisent quasiment en un unique point correspondant à un état de colmatage très avancé (environ 35 mg collectée, efficacité supérieure à 98%) (Figure VI-14).

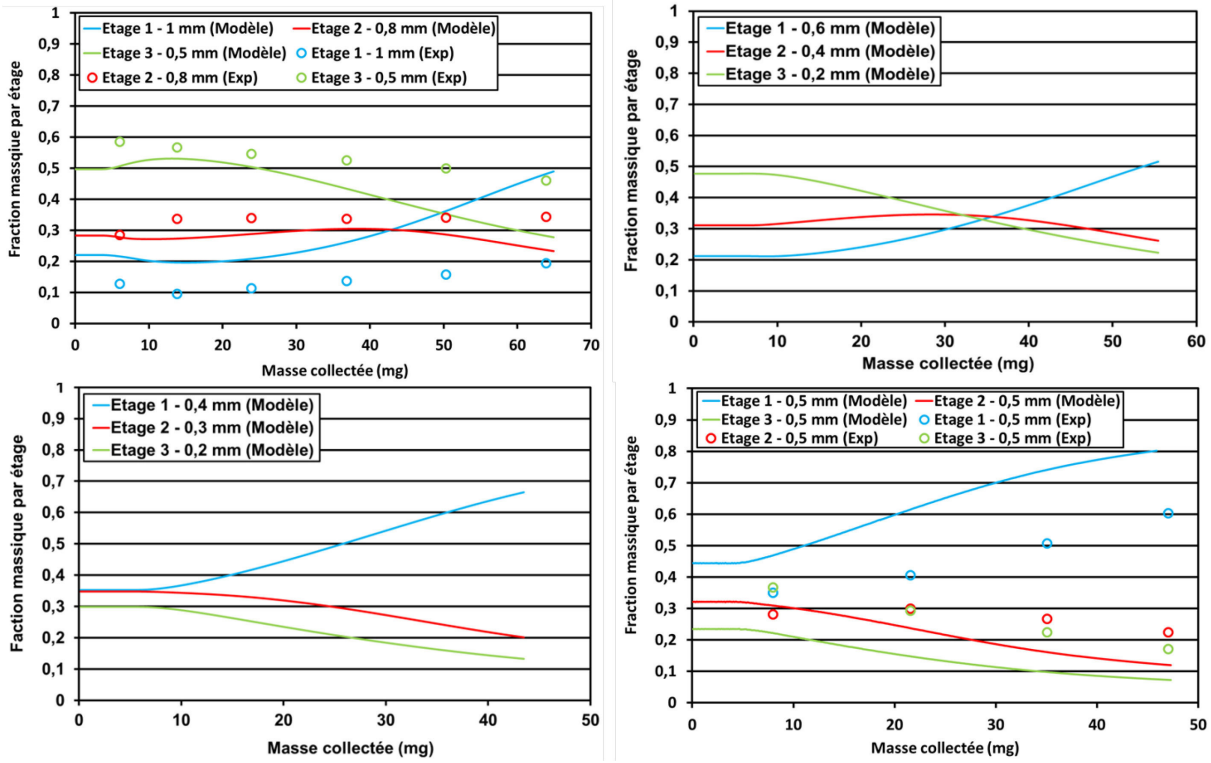


Figure VI-13 Evolution de la fraction de la masse totale collectée dans les trois étages pour chaque configuration de lit granulaire étudiée : 1 mm/0,8 mm/ 0,5 mm (En-haut - Gauche) ; 0,6 mm/0,4 mm/0,2 mm (En- haut - Droite) ; 0,4 mm/0,3 mm/0,2 mm (En- bas - Gauche) ; 0,5 mm/0,5 mm/0,5 mm (En- bas - Droite)

Du fait de collecteurs plus grands, la configuration améliorée mais non-optimisée (1 mm/0,8 mm/0,5 mm) permet de collecter une quantité de particules légèrement plus importante durant la phase de filtration en profondeur et est donc sur ce plan plus avantageuse. Néanmoins, lors de la description du principe de l'optimisation multicritère il a pu être vu que la seule bonne répartition de la masse collectée ne suffisait pas à rendre une configuration exploitable dans l'industrie et que l'efficacité de collecte devait également être également très élevée pour une application telle que l'épuration des fumées de métallisation. Ces deux paramètres étant antinomiques, la Figure VI-14 met particulièrement bien en évidence le bon compromis que représente la deuxième configuration optimisée (0,6 mm/0,4 mm/0,2 mm). En effet, de par ses allures d'évolution de perte de charge et d'efficacité, cette configuration apparait comme une combinaison des avantages du lit améliorée mais non-optimisée (1 mm/0,8 mm/0,5 mm) et de celui optimisé par les experts n°1 et n°4 (0,4 mm/0,3 mm/0,2 mm). Ce second lit optimisé génère ainsi une évolution relativement lente de la perte de charge au cours du colmatage et possède simultanément une très haute efficacité initiale de collecte (environ 80%) tendant rapidement vers 100%. Au vu de ses très bonnes caractéristiques, la combinaison de diamètres de collecteurs 0,6 mm/0,4 mm/0,2 mm a été considérée comme le meilleur compromis d'après nos critères et les dimensions choisies pour la structure du lit granulaire multicouche (nombre de couches, épaisseur des couches).

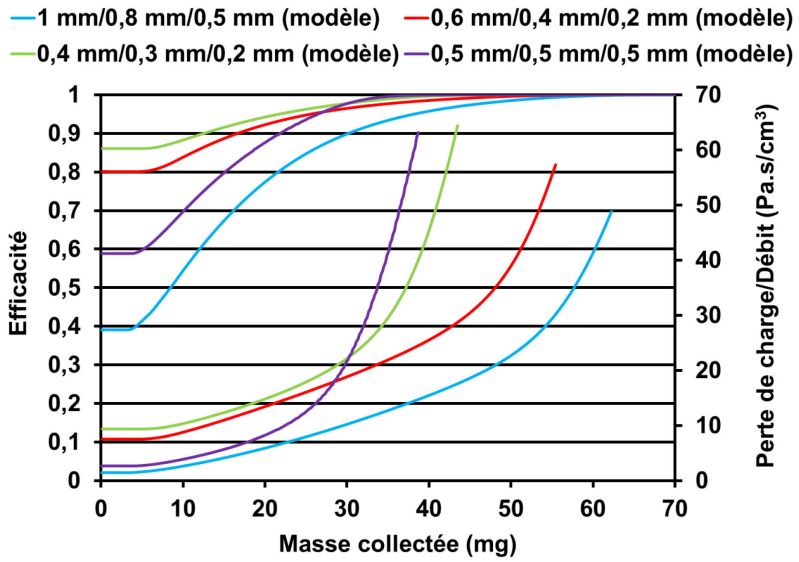


Figure VI-14 Evolution prédite par le modèle de l'efficacité et de la perte de charge des lits granulaires conventionnel, améliorés et optimisés

VI.2.3 Comparaison des performances de médias fibreux avec celles du lit granulaire tricouche optimisé (L-GTO)

Afin de vérifier si les performances d'un L-GTO peuvent soutenir la comparaison avec celles des médias fibreux, les prédictions du modèle ont été comparées aux résultats expérimentaux de colmatages de médias fibreux plans par un aérosol ultrafin de carbone (Générateur Palas GFG 1000). Les deux médias fibreux utilisés sont le D309, un média de très haute efficacité et le C4MB21 un média de moyenne efficacité. Les expériences de colmatage des médias fibreux ont été effectuées à deux vitesses superficielles différentes : 2,5 cm/s et 3,8 cm/s. Ces faibles vitesses sont de l'ordre de grandeur de celles couramment employées dans les dépoussiéreurs à cartouches plissées du fait de leur importante surface de filtration. Les caractéristiques de ces deux médias fibreux sont regroupées dans le Tableau VI-2:

Tableau VI-2 Propriétés de structure des médias fibreux utilisés

Médias fibreux	D309	C4MB21
Diamètre des fibres (µm)	1,21	1,66
Masse volumique du matériau (g/cm^3)	2,4658	0,8779
Epaisseur (µm)	409	628
Compacité (%)	7,8	6,5

Les comparaisons des résultats de colmatage des médias fibreux avec ceux des L-GTO prédits par le modèle sont présentées sur la Figure VI-15.

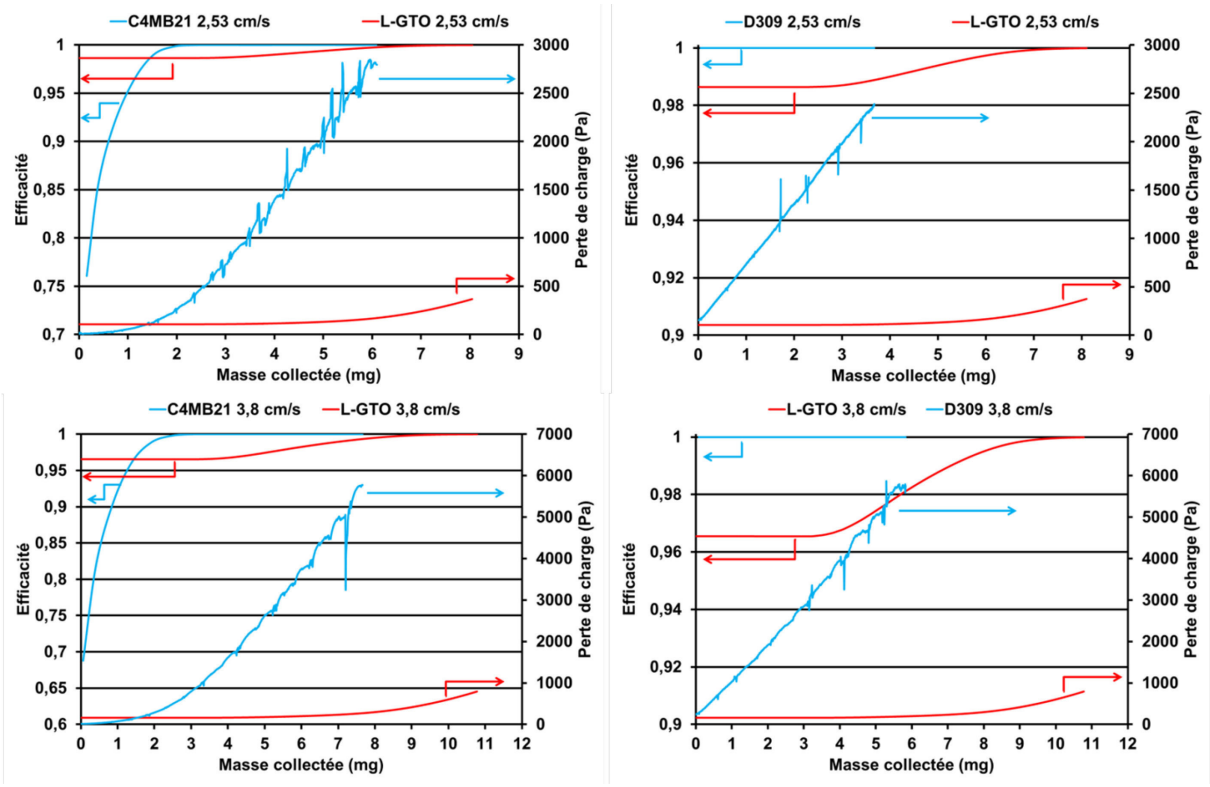


Figure VI-15 Comparaison des évolutions de perte de charge et d'efficacité d'un L-GTO et de deux médias fibreux plans (C4MB21 et D309) pour deux vitesses superficielles (2,53 cm/s et 3,8 cm/s)

D'après ces résultats de colmatage, il apparait que l'utilisation d'un L-GTO est dans ces deux cas plus avantageuse en termes de perte de charge. En effet, même si le C4MB21 présente une phase de filtration en profondeur significative, ces deux médias fibreux opèrent tout de même majoritairement en formant un gâteau de particules en surface qui conduit à une forte augmentation linéaire de la perte de charge. A titre d'exemple, à la fin de la phase de filtration en profondeur du L-GTO, sa perte de charge est environ 7 fois moins élevée que celle des médias fibreux. En termes d'efficacité, le L-GTO présente également de très bonnes performances favorisées par le fait que des faibles vitesses d'écoulement augmentent l'efficacité de collecte des PUF par diffusion brownienne. Dans tous les cas décrits par la Figure VI-15, l'efficacité initiale du L-GTO est supérieure à 96% et surclasse donc de ce point de vue le C4MB21. Ce dernier atteint cependant plus précocement une efficacité très proche de 100%. Ceci est un effet indésirable de la bonne répartition de la masse collectée qui limite l'évolution de la perte de charge en réduisant l'obstruction des pores mais qui freine par conséquent aussi l'augmentation de l'efficacité de collecte due au colmatage. La comparaison en termes d'efficacité de collecte avec le D309 est logiquement en faveur de ce dernier. Ces premières comparaisons avec des médias fibreux ont permis de montrer que le L-GTO pouvait concilier deux comportements généralement contradictoires, à savoir une phase de filtration en profondeur étendue générant une faible augmentation de perte de charge tout en conservant une haute efficacité de collecte. D'un point de vue législatif, la concentration particulaire maximale des rejets industriels contenant du Zinc comme les fumées de métallisation est fixée par décret à 5 mg/m^3 pour la fraction alvéolaire des particules et pour des installations rejetant plus de 25 kg/h de particules.

La concentration de ce type de fumées étant d'environ 100 mg/m^3 (Bémer, Régnier, et al. 2013), cette législation conduit les industriels à mettre en place des systèmes d'épuration efficaces à au moins 95%. Bien qu'obtenues pour des particules ultrafines de carbone, les efficacités des L-GTO prédites par le modèle sont supérieures à 95 % et laissent ainsi entrevoir la possibilité d'utiliser ce type de lits optimisés à ces faibles vitesses de filtration pour satisfaire les exigences réglementaires vis-à-vis des rejets des fumées de métallisation.

Bien que la cinétique de colmatage soit potentiellement plus avantageuse lors de l'utilisation d'un L-GTO pour la filtration des PUF, l'optimisation de la durée de fonctionnement d'un lit granulaire ne se résume cependant pas seulement à cela. En effet, il est aussi nécessaire de pouvoir décolmater un certain nombre de fois le média filtrant pour restaurer une perte de charge proche de celle de l'état initial et réduire ainsi sa fréquence de renouvellement (changement des manches, cartouches ou des collecteurs dans le cas de lits granulaires). Pour que les L-GTO soient une alternative viable aux médias fibreux pour la filtration des PUF, il faut par conséquent mettre au point un système de décolmatage ne souffrant pas des mêmes inconvénients que ceux présentés dans l'état de l'art de ce chapitre.

VI.3 Restauration de la perte de charge d'un lit granulaire

Afin de s'affranchir des contraintes des techniques de décolmatage pneumatiques décrites dans l'état de l'art, le système de restauration de la perte de charge des lits granulaires employés pour la filtration des PUF devra être capable de faire chuter périodiquement et en ligne (sans arrêt du procédé) la perte de charge tout en ne nécessitant pas d'extraction vers un dépoussiéreur auxiliaire. La technique utilisée ne devra ainsi pas remettre en suspension les particules déposées, mais plutôt les réorganiser à l'intérieur du lit granulaire en déstructurant le dépôt de particules afin de libérer à nouveau des espaces dans des pores qui étaient devenus significativement obstrués.
Une technique simple à mettre en œuvre et pouvant potentiellement convenir est le décolmatage par vibrations mécaniques. Cela consiste à appliquer sur les parois du lit granulaire des chocs à répétition durant un court instant au moyen d'un élément vibrateur. Avec ce système, les vibrations créées au moment des chocs contre la paroi se propagent à l'ensemble des collecteurs qui sont ainsi mis en mouvement. Ces déplacements brefs et rapides des collecteurs permettent de rompre les liens se formant entre les particules du dépôt qui mènent en l'absence de décolmatage à la formation d'une couche de particules très résistante à l'écoulement. On peut également supposer que le fait de procéder en ligne à cette restauration de la perte de charge permet également de déplacer par le flux d'air des agglomérats résultant de la fragmentation du dépôt vers des zones du lit moins colmatées. Cette technique de décolmatage par vibrations a fait l'objet d'une étude préliminaire à échelle de laboratoire (lit conventionnel, diamètre des collecteurs : 0,695 mm, débit : 10 l/min) (Bémer, Subra, et al. 2013; Bémer et al. 2015) puis d'un essai à échelle semi-industrielle sur un pilote traitant un débit plus important (lit bicouches, diamètre des collecteurs : 0,695 mm et 1,5 mm, débit : 100 m^3/h) (Bémer et al. 2015). Lors de l'étude à petite échelle, le vibrateur utilisé était un graveur mécanique pour métaux délivrant des vibrations à une fréquence 50 Hz pendant 1 à 2 secondes. D'après les auteurs, cette technique de décolmatage s'est avérée très prometteuse en respectant les critères énoncés précédemment et en permettant dans un très court laps de temps de retrouver une perte de charge quasi-identique à celle du lit granulaire vierge. Par ailleurs, en procédant à des expériences plus longues, les auteurs ont pu montrer que le comportement d'un lit granulaire au fur et à mesure des cycles de colmatage/décolmatage par vibrations est identique à celui de médias fibreux à décolmatage pneumatique (Cf. Chapitre 1).

En effet, on retrouve sur la Figure VI-16 les trois phases caractéristiques du fonctionnement d'un filtre périodiquement décolmaté.

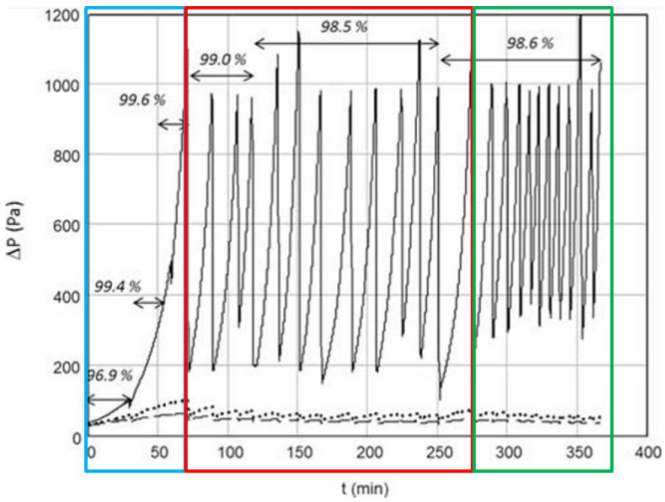


Figure VI-16 Variation de la perte de charge d'un lit granulaire de laboratoire au fur et à mesure des cycles de colmatage/décolmatage (D'après Bémer et al. 2015)

La période initiale (encadré bleu) voit une forte augmentation de la perte de charge suivie d'une phase de stagnation de la perte de charge résiduelle (après décolmatage) et donc du temps entre deux décolmatages (encadré rouge). Durant la troisième phase (encadré vert), la perte de charge résiduelle augmente entrainant une hausse de la fréquence de décolmatage. Similairement aux médias fibreux, lorsque le temps devient trop court entre deux restaurations de la perte de charge, cela signifie que le lit granulaire est saturé et que les collecteurs doivent être remplacés.

L'étude du décolmatage du pilote à l'échelle semi-industrielle a permis par la suite de confirmer la faisabilité de ce système sur un temps de fonctionnement plus important que celui des expériences présentées sur la Figure VI-16 ainsi que pour un plus grand débit à traiter en vue d'une implantation industrielle (Bémer et al. 2015). Dans leur étude, Bémer et al. (2015) ont également observé un autre point très important concernant le décolmatage par vibrations, à savoir qu'il ne produit pas de relargage de poussières préalablement déposées. Par contre, ils observent, après le décolmatage, une hausse de la concentration en sortie de lit granulaire, liée à une baisse momentanée de l'efficacité de collecte du fait du débouchage de certains pores. Ce problème de diminution d'efficacité pourrait être en partie résolu par l'utilisation d'un L-GTO. En effet, il a été possible de remarquer que ce type de lits possède une efficacité initiale supérieure aux limites réglementaires tout en minimisant au maximum la perte de charge. L'utilisation d'un L-GTO pourrait ainsi éviter de devoir ajouter une couche de collecteurs de sécurité dont le dimensionnement peut s'avérer complexe pour uniquement pallier la baisse d'efficacité à la suite d'un décolmatage sans introduire une augmentation de perte de charge trop importante.

VI.4 Conclusions et perspectives

VI.4.1 Optimisation de la durée de vie des lits granulaires

L'étude bibliographique réalisée en début de chapitre a permis de mettre évidence les principales améliorations apportées aux lits granulaires afin de les rendre utilisables dans des situations industrielles particulières pour lesquelles les autres types de filtres couramment utilisés ne conviennent pas. La quasi-totalité des techniques mises au point concerne la filière industrielle de production d'énergie à partir du charbon nécessitant la filtration d'aérosols de cendres microniques dont la température peut dépasser 1000°C. Parmi les systèmes de dépoussiérages basés sur un lit granulaire figurent notamment les lits granulaires mouvants (MGBF) ou les panneaux à lit filtrant (PB). Ces solutions présentent souvent un problème d'efficacité vis-à-vis des particules ultrafines, d'encombrement, ou de consommation de matériaux granulaires (Xiao et al. 2013). Ces deux dernières limitations sont d'autant plus gênantes dans le cadre de cette étude que les débits à traiter en aval des procédés de métallisation sont généralement très importants (10 000 à 20 000 m^3/h). Pour limiter la consommation de matériaux granulaires et donc les coûts de fonctionnement, des systèmes de recyclages des collecteurs en circuit fermé ont été mis au point pour certains MGBF (les PB n'en disposent pas pour le moment). Ces systèmes consistent dans la plupart des cas à transporter les collecteurs mélangés à du dépôt de l'aval du lit granulaire vers l'amont au moyen d'un flux d'air comprimé. Avant d'être réinjectés dans le lit granulaire les collecteurs sont séparés des fragments de dépôt soit par différence de vitesse minimum de fluidisation soit par effets inertiels. Dans tous ces dispositifs les particules séparées des collecteurs sont évacuées avec le flux d'air vers un dépoussiéreur à médias fibreux classiques servant de lieu de dépôt terminal. Dans ces systèmes, le lit granulaire n'est ainsi utilisé que comme un filtre transitoire permettant d'effectuer une filtration à haute température des particules en attendant qu'elles soient collectées définitivement à froid. Les médias fibreux ne pouvant pas être décolmatés dans le cas des PUF, leur utilisation pour la collecte terminale des particules rend non-souhaitable l'utilisation des MGBF pour la filtration des fumées de métallisation. Face à ces contre-indications, il est apparu dès lors plus judicieux de s'orienter vers des lits granulaires fixes qui présentent une meilleure efficacité de collecte et qui génèrent une moindre consommation de matériaux granulaires. Ce type de lits présentant l'inconvénient de ne pas pouvoir renouveler en continu les collecteurs contaminés, il est nécessaire de chercher à étendre au maximum leur durée de fonctionnement. Pour ce faire, plusieurs études de la littérature ont utilisé des lits granulaires à deux couches composées de collecteurs de diamètres différents, les plus fins étant situés plus en profondeur. Ce type de configuration a permis dans ces études de prolonger la durée de la phase de filtration en profondeur et donc d'augmenter la capacité de rétention avant qu'un décolmatage ne soit nécessaire. De plus, ces lits bicouches permettent à efficacité égale de générer une perte de charge plus faible que celle d'un lit monocouche. Bien que ces lits à deux couches apparaissent comme la solution la plus prometteuse dans la littérature en vue d'une utilisation industrielle des lits granulaires pour la filtration des PUF, il a également pu être remarqué que ces configurations ne sont pas optimales. En effet, de meilleurs compromis peuvent être obtenus en termes de perte de charge, d'efficacité et d'encombrement en faisant varier par exemple le nombre de couches (i.e. de diamètres de collecteurs), les diamètres de collecteurs ou encore la profondeur des couches.

Dans le cas des lits fixes, la technique de décolmatage la plus utilisée consiste en la fluidisation du lit qui permet d'emporter par un flux d'air comprimé les particules en dehors du lit granulaire puis de les évacuer vers un dépoussiéreur terminal à médias fibreux. Pour les mêmes raisons que pour les MGBF, cette technique de décolmatage n'est pas utilisable dans une filière de traitement des fumées de métallisation.

Sur la base de cet état de l'art, il a été décidé dans un premier temps de reprendre le concept de lit granulaire multicouche afin de trouver la configuration optimale représentant le meilleur compromis en termes d'encombrement, de perte de charge, d'efficacité et de capacité de rétention. Pour ce faire, une démarche d'analyse et d'optimisation multicritère basée sur la méthode de Rough-sets a été mise en œuvre en utilisant le modèle présenté au chapitre 5 pour simuler le colmatage des différentes configurations possibles de lits multicouches. Cette démarche a permis de s'affranchir d'un nombre d'expériences prohibitif si elles avaient dû être effectivement réalisées. Grâce à l'optimisation multicritère, il a été possible de trouver une configuration pouvant potentiellement permettre l'utilisation de lits granulaires pour la filtration des PUF. Cette configuration consiste en un lit granulaire composé de trois couches d'environ 1 cm de profondeur chacune, la première étant remplie de collecteurs de 0,6 mm de diamètre, la deuxième de 0,4 mm et la troisième de 0,2 mm. Elle possède par ailleurs une efficacité de collecte très élevée ainsi qu'une faible augmentation de perte de charge au cours du colmatage. Des comparaisons avec des données de colmatage de médias fibreux ont permis de conforter ces résultats. L'amélioration de la durée de fonctionnement globale d'un lit granulaire ne se résumant pas seulement à l'augmentation de sa capacité de rétention, il a fallu également envisager une nouvelle façon de restaurer une perte de charge acceptable. Ce problème a été résolu sur la base d'études préliminaires de la littérature concernant la filtration des fumées de métallisation par lit granulaire qui font état de la faisabilité d'un décolmatage par vibrations ne provoquant aucune resuspension de particules en aval du lit (Bémer, Subra, et al. 2013; Bémer et al. 2015).

VI.4.2 Dans la perspective d'une utilisation industrielle…

Malgré ces bons résultats, les L-GTO ne peuvent être utilisés en l'état pour la filtration industrielle des fumées de métallisation. En effet, la vitesse superficielle doit être assez faible et ramenée à des valeurs proches de celles rencontrées dans les dépoussiéreurs à médias fibreux (i.e., quelques cm/s) pour favoriser la collecte des particules par diffusion brownienne ainsi que pour limiter la perte de charge compte tenu des débits importants à traiter. Pour limiter la vitesse superficielle, il est donc nécessaire d'augmenter drastiquement la surface de filtration (la surface d'entrée du lit granulaire). Pour cette raison, les L-GTO ne peuvent se présenter sous leur forme plane de laboratoire dont l'empreinte au sol deviendrait irréaliste à l'échelle industrielle. A titre d'exemple, les surfaces déployées dans les dépoussiéreurs à médias fibreux conventionnels sont souvent supérieures à plusieurs centaines de m² pour atteindre des vitesses de filtration de l'ordre d'1 cm/s (Bémer, Régnier, et al. 2013). Pour pallier ce problème, un système de manche granulaire cylindrique a été imaginé sur le principe des cartouches filtrantes actuelles, le filtre à fibres plissé étant remplacé par un lit granulaire (Figure VI-17).

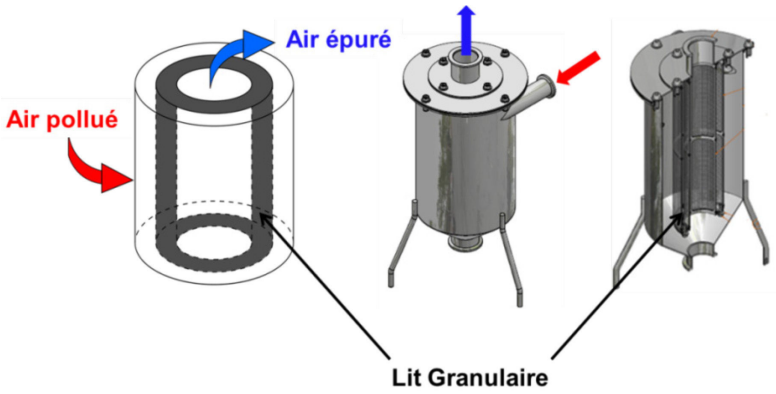


Figure VI-17 Schéma de principe de la manche granulaire, représentations 3D extérieure et en coupe.

Dans cette manche granulaire, l'air pénètre horizontalement dans le dispositif et traverse ensuite de l'extérieur vers l'intérieur le lit granulaire avant d'être rejeté verticalement vers le haut. Au-delà d'augmenter la surface de filtration, cette géométrie cylindrique couplée à l'entrée d'air tangentielle par rapport au lit granulaire permet, si le dimensionnement est correct, de séparer par effet cyclonique d'éventuelles particules microniques récupérées dans la partie basse de la manche. Afin de valider le principe de fonctionnement d'une manche granulaire des essais préliminaires de colmatage ont été réalisés sur une manche monocouche composée de collecteurs de 0,155 mm de diamètre et pour différentes vitesses de filtration. Dans le prototype utilisé, l'épaisseur du lit granulaire est de 1,5 cm. Ces essais ont également permis de vérifier l'applicabilité du décolmatage par vibrations à cette nouvelle géométrie. Un exemple d'un cycle de colmatage/décolmatage de la manche granulaire à une vitesse superficielle de 0,56 cm/s (débit de 21,2 l/min) est présenté sur la Figure VI-18.

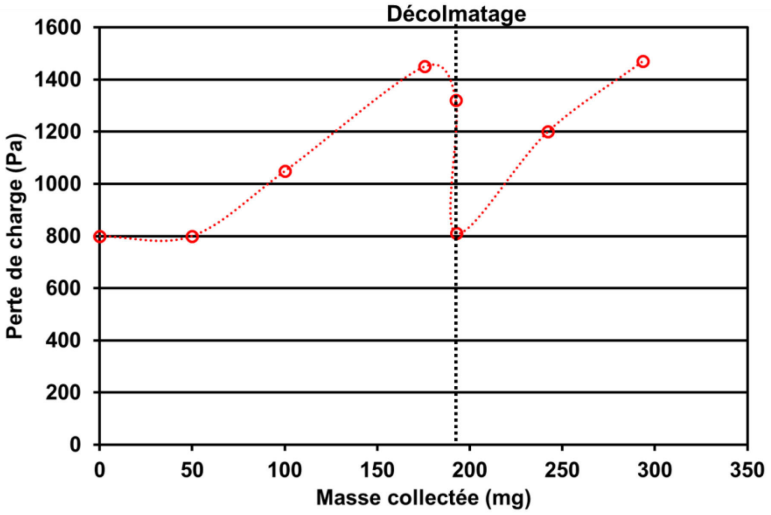


Figure VI-18 Evolution de la perte de charge lors d'un cycle de colmatage/décolmatage d'une manche granulaire

Dans un objectif d'optimiser le procédé de filtration par lit granulaire, il serait possible d'améliorer l'efficacité initiale de collecte en tirant partie d'effets électrostatiques. En effet, cela engendrerait une meilleure efficacité initiale de collecte à taille de collecteurs ou à profondeur constantes (i.e., sans augmentation de la perte de charge). L'utilisation d'effets électrostatiques pourrait également permettre de conserver une efficacité initiale importante pour une vitesse superficielle plus élevée, soit pour un débit à traiter plus grand, ou encore pour un plus faible encombrement (diminution de la surface de filtration). Pour vérifier cela, des essais d'efficacité initiale ont été réalisés sur des billes de polystyrène expansé (PSE) dont certains exemples de la vie quotidienne suffisent à démontrer leurs propriétés électrostatiques. Leur utilisation a permis d'augmenter significativement l'efficacité initiale de collecte de particules neutres en comparaison d'un lit équivalent en perte de charge composé de billes en acier inoxydable (Figure VI-19). Les efficacités initiales de ce lit équivalent ont été calculées avec les modèles de la littérature.

L'utilisation de billes de PSE pourrait également s'avérer utile dans un souci de réduction de la masse des installations industrielles utilisant des lits granulaires. En effet, la masse volumique des collecteurs en PSE est comprise le plus souvent entre 10 et 30 kg/m^3 soit entre 750 et 250 fois moins que celle de l'acier inoxydable et 250 à 100 fois moins que celle du verre. Les billes de PSE peuvent enfin présenter des avantages économique et écologique. En effet, ils sont peu coûteux et peuvent par ailleurs provenir de filières de recyclage des emballages de polystyrène expansé.

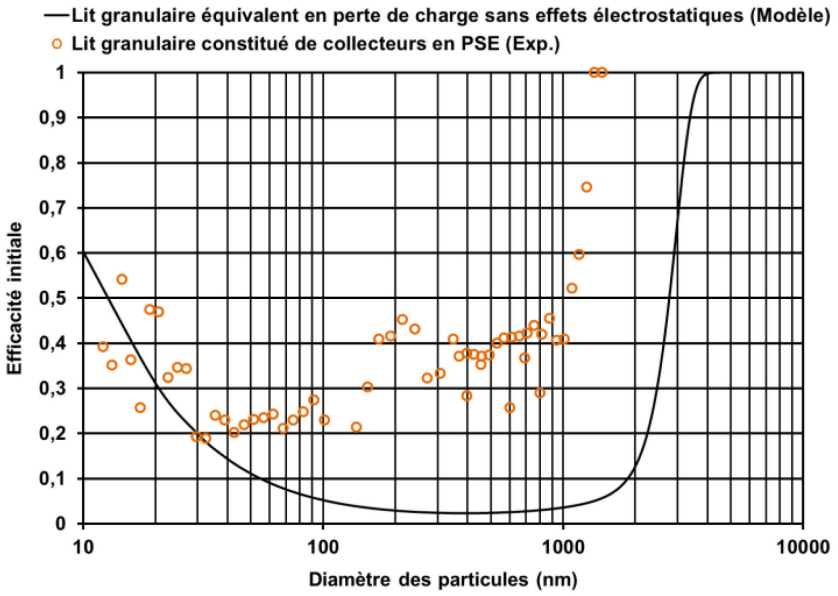


Figure VI-19 Comparaison des efficacités fractionnelles d'un lit granulaire composé de billes de PSE avec celles d'un lit équivalent en perte de charge composé de billes d'acier inoxydable

Dans ce chapitre, plusieurs principes d'amélioration des performances des lits granulaires ont été proposés notamment afin d'optimiser leur durée de fonctionnement, d'augmenter leur surface de filtration ou encore d'améliorer leur efficacité initiale. Les résultats obtenus, qu'ils soient issus d'études approfondies ou préliminaires, tendent à prouver que ces différentes pistes d'amélioration peuvent potentiellement permettre aux lits granulaires d'être une alternative crédible aux médias fibreux pour la filtration des PUF métalliques. Néanmoins, avant d'apporter une réponse définitive, d'autres essais plus poussés devront encore être réalisés afin d'étudier les performances de lits granulaires regroupant tous ces principes d'amélioration, à savoir un lit granulaire tricouche optimisé mis sous la forme d'une manche et constitué de collecteurs en polystyrène expansé dont le décolmatage serait effectué par vibrations. La faisabilité de ce type de décolmatage vis-à-vis des collecteurs en PSE est un point particulièrement important à étudier. En effet, compte tenu de la faible inertie de ces collecteurs, il est possible que le décolmatage ne soit pas aussi efficace qu'avec des collecteurs en acier ou en verre. Enfin, il est également nécessaire de développer un procédé de recyclage des collecteurs afin de pouvoir les réutiliser après leur remplacement lors de la saturation du lit granulaire. Parmi les solutions les plus plausibles figure le lavage par ultrasons. En effet, il a pu être remarqué au chapitre 4 que des collecteurs pouvaient être restaurés à l'état initial en les plongeant dans un bain à ultrasons. Cette solution présente l'avantage de piéger les particules dans un liquide plutôt que sous la forme de matériaux hautement pulvérulents comme dans les trémies des dépoussiéreurs à médias fibreux. De plus, il existe actuellement un projet européen (NanoFloc) travaillant à l'élaboration de procédés d'électro-agglomération de nanoparticules en milieu liquide afin de permettre la récupération des matériaux en vue d'une réutilisation ultérieure. Dans le cas spécifique du polystyrène expansé, il existe des procédés relativement simples de dissolution / distillation (Brevet Sony®) permettant de récupérer la matière première en tant que résidu, i.e. le polystyrène cristal, mais dont on ne connait pas le comportement en présence de matière particulaire (Motch & Charlier 2005).

Références

Bai, J., S. Wu, A. Lee, and C. Chu. 2007. « Filtration of Dust in a Circulating Granular Bed Filter with Conical Louver Plates (CGBF-CLPs) ». *Journal of Hazardous Materials* 142 (1–2): 324–31.

Bémer, D., R. Régnier, Y. Morele, F. Grippari, J. Appert-collin, and D. Thomas. 2013. « Study of Clogging and Cleaning Cycles of a Pleated Cartridge Filter Used in a Thermal Spraying Process to Filter Ultrafine Particles ». *Powder Technology* 234 (January): 1–6.

Bémer, D., I. Subra, Y. Morele, A. Charvet, and D. Thomas. 2013. « Experimental Study of Granular Bed Filtration of Ultrafine Particles Emitted by a Thermal Spraying Process ». *Journal of Aerosol Science* 63 (September): 25–37.

Bémer, D., L. Wingert, Y. Morele, and I. Subra. 2015. « Feasibility of Granular Bed Filtration of an Aerosol of Ultrafine Metallic Particles Including a Pressure Drop Regeneration System ». *Journal of the Air & Waste Management Association (1995)* 65 (9): 1119–26.

Brown, R. C., H. Shi, G. Colver, and S. Soo. 2003. « Similitude Study of a Moving Bed Granular Filter ». *Powder Technology* 138 (2–3): 201–10.

Chen, Y., S. Hsiau, S. Lai, Y. Chyou, H. Li, and C. Hsu. 2009. « Filtration of Dust Particulates with a Moving Granular Bed Filter ». *Journal of Hazardous Materials* 171 (1–3): 987–94.

Chen, Y., S. Hsiau, J. Smid, J. Wu, and S. Ma. 2016. « Removal of Dust Particles from Fuel Gas Using a Moving Granular Bed Filter ». *Fuel* 182 (October): 174–87.

El-Hedok, I.A., L. Whitmer, and R.C. Brown. 2011. « The Influence of Granular Flow Rate on the Performance of a Moving Bed Granular Filter ». *Powder Technology* 214 (1): 69–76.

Hsiau, S. S, J Smid, F. H Tsai, J. T Kuo, and C. S Chou. 2004. « Placement of Flow-Corrective Elements in a Moving Granular Bed with Louvered-Walls ». *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 43 (8): 1037–45.

Hsiau, S.S., J. Smid, S.A. Tsai, C.C. Tzeng, and Y.J. Yu. 2008. « Flow of Filter Granules in Moving Granular Beds with Louvers and Sublouvers ». *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 47 (12): 2084–97.

Hsiau, S. S., J. Smid, C. Y. Wang, J. T. Kuo, and C. S. Chou. 1999. « Velocity Profiles of Granules in Moving Bed Filters ». *Chemical Engineering Science* 54 (3): 293–301.

Lee, K.-C., R. Pfeffer, and A.M. Squires. 2005. « Granular-Bed Filtration Assisted by Filter-Cake Formation: 1. Exploiting a New Mode of Soil Failure for Renewal of Filtration Surfaces in a Panel Bed ». *Powder Technology* 155 (1): 5–16.

Liu, K., and M. Wey. 2007. « Filtration of Fly Ash Using Fluidized Bed at 300–500 °C ». *Fuel* 86 (1–2): 161–68.

Motch, S., and C. Charlier. 2005. « Extension de L'étude D'un Procédé de Recyclage Du Polystyrène et Caractérisation Du Produit Obtenu ». 19.

Paenpong, C., and A. Pattiya. 2013. « Filtration of Fast Pyrolysis Char Fines with a Cross-Flow Moving-Bed Granular Filter ». *Powder Technology* 245 (September): 233–40.

Peng, C. 2004. « High Temperature Gas Cleanup Using a Taiwan ITRI Moving Granular Bed Filter (MGBF) ». *Presentation*, October.

Renaud, J. 2012. « Méthode Pour Trouver Les Meilleurs Produits Par Les Cartes Rough Sets ». *Techniques de L'ingénieur*.

Rodon, I., K.-C. Lee, R. Pfeffer, A.M. Squires, and O.K. Sønju. 2005. « Granular-Bed Filtration Assisted by Filter-Cake Formation: 2. The Panel Bed Gas Filter with Puffback Renewal of Gas-Entry Surfaces ». *Powder Technology* 155 (1): 52–61.

Shi, K., G. Yang, S. Huang, S. Tian, Z. Hu, and B. Huang. 2015. « Study on Filtering Characteristics of Aerosol Particulates in a Powder-Grain Dual-Layer Granular Bed ». *Powder Technology* 272 (March): 54–63.

Squires, A. M. 2005. « Granular-Bed Filtration Assisted by Filter-Cake Formation: 4. Advanced Designs for Panel-Bed Filtration and Gas Treating ». *Powder Technology* 155 (1): 74–84.

Tian, S., G. Yang, Z. Li, K. Shi, G. Ding, and F. Hu. 2016. « Cascade Filtration Properties of a Dual-Layer Granular Bed Filter ». *Powder Technology* 301 (November): 545–56.

Wu, M.S., K.-C. Lee, R. Pfeffer, and A.M. Squires. 2005. « Granular-Bed Filtration Assisted by Filter Cake Formation 3. Penetration of Filter Cakes by a Monodisperse Aerosol ». *Powder Technology* 155 (1): 62–73.

Xiao, G., X. Wang, J. Zhang, M. Ni, X. Gao, Z. Luo, and K. Cen. 2013. « Granular Bed Filter: A Promising Technology for Hot Gas Clean-Up ». *Powder Technology* 244 (August): 93–99.

Yang, G., and J. Zhou. 2007. « Experimental Study on a New Dual-Layer Granular Bed Filter for Removing Particulates ». *Journal of China University of Mining and Technology* 17 (2): 201–4.

Conclusion générale

L'objectif initial de cette étude était de déterminer si les lits granulaires pouvaient représenter une alternative aux filtres à fibres classiquement utilisés lors la séparation des particules ultrafines générées par certains procédés industriels tels que la métallisation. Rappelons que cette recherche d'une alternative est motivée par un contexte industriel et législatif particulier. En effet, l'inefficacité du décolmatage des filtres fibreux simultanément à une législation européenne de plus en plus stricte en matière de protection des personnes et de l'environnement conduit actuellement les industriels à remplacer fréquemment les filtres engendrant ainsi des coûts importants.

L'étude bibliographique réalisée sur les diverses utilisations des lits granulaires dans des problématiques de filtration (en milieu liquide et gazeux) a montré que leur comportement en cours de colmatage par des aérosols de nanoparticules est très peu documenté. Il est ainsi apparu nécessaire en premier lieu de mener des expériences de colmatage dans des conditions expérimentales variées notamment en matière de vitesse d'écoulement, de diamètres de collecteurs, ainsi que de nature et de taille des particules. Ces expériences ont permis de mettre en évidence un colmatage se faisant en trois phases distinctes (A, B, C) d'évolution des performances (efficacité et perte de charge). Les deux premières phases (A et B) sont caractérisées par une faible et une brusque croissance de ces deux grandeurs, respectivement et représentent la période de filtration en profondeur, i.e., où les particules sont collectées dans le volume poreux du lit granulaire. Lors de la troisième phase (C), la perte de charge augmente linéairement à partir du moment où l'efficacité du lit granulaire atteint une valeur proche de 100% et correspond par conséquent à une phase de filtration en surface du lit granulaire et à la formation d'un gâteau de particules. Il a toutefois pu être observé que cette évolution linéaire ne correspondait pas à la phase de filtration en surface habituellement rencontrée lors d'expérience sur des médias fibreux. En effet, il a pu être montré que cette différence d'évolution de perte de charge est liée à la formation de gâteaux interstitiels dans les pores de la première strate de collecteurs et non à celle d'un gâteau d'épaisseur uniforme au-dessus de ces derniers. Il semble par ailleurs qu'un état de colmatage conduisant à ce dernier type de gâteaux soit difficilement atteignable du fait du débouchage continuel de pores observé expérimentalement au-delà d'une certaine perte de charge.

Afin de pouvoir se prononcer sur la faisabilité d'une utilisation des lits granulaires pour la filtration des PUF, il est nécessaire de pouvoir optimiser le procédé en faisant varier les principaux paramètres tels que le diamètre de collecteurs, la profondeur du lit granulaire ou la vitesse superficielle. La variation combinée de ces paramètres génère un grand nombre de configurations expérimentales pour lesquelles les performances des lits granulaires doivent être connues. La réalisation de la totalité de ces expériences s'avérant fastidieuse voire impossible, il a été décidé de trouver un outil capable de prédire les performances des lits granulaires en cours de colmatages par des PUF.
L'une des solutions ayant été envisagée est l'utilisation de la simulation numérique et plus particulièrement de GeoDict®, un code de calcul spécialement dédié à la simulation et à l'analyse des propriétés des milieux poreux. Avant de pouvoir étudier la validité de ce code de calcul pour la prédiction des performances des lits granulaires, une étude de sensibilité a tout d'abord été menée afin d'identifier et de définir les paramètres clés influençant aussi bien la génération aléatoire de lits granulaires virtuels (microstructures) représentatifs de la réalité que les résultats de simulation en termes d'efficacité et de perte de charge initiales. A la suite de cette étude de sensibilité, des comparaisons entre des données expérimentales ont partiellement validé le code de calcul vis-à-vis de l'état initial de la filtration des PUF par lit granulaire.

Conclusion générale

En effet, le code de calcul a permis de prédire l'efficacité initiale de collecte relativement précisément et ce même pour des PUF prenant la forme d'agglomérats assimilés lors des simulations à leur sphère équivalente en volume. Les comparaisons entre les pertes de charge simulées et expérimentales ont en revanche mis en évidence des différences significatives, i.e. entre 20 et 30%. Néanmoins, il a pu être observé que l'écart entre les résultats de simulation et ceux obtenus en utilisant un modèle de référence tel que celui de Kozeny-Carman tend vers une constante d'environ 22 dès lors que les paramètres de génération des microstructures sont définis en accord avec les résultats de l'étude sensibilité. Le fait que l'écart à une loi de référence atteigne une valeur constante permet ainsi à priori d'estimer l'erreur initiale commise au départ d'une simulation de colmatage. Les performances du code de calcul ayant été précisément évaluée vis-à-vis de l'état initial, une nouvelle étude de sensibilité a été réalisée concernant les principaux paramètres des simulations de colmatage. En effet, du fait de la grande taille des domaines de simulation, du nombre important de voxels que cela implique, et du très grand nombre de particules à simuler durant les phases A et B (de l'ordre de 10^{14}), il existe des paramètres non-physiques tels que la fréquence de calcul de l'écoulement ou bien la multiplicité qui sont spécifiques aux simulations de colmatage et qui peuvent permettre de réduire considérablement le temps de calcul. Malheureusement, les valeurs qu'il convient de définir pour ces paramètres, n'ont pas permis de réduire suffisamment le temps de calcul pour que la simulation numérique puisse être utilisée seule en tant qu'outil prédictif des performances des lits granulaires vis-à-vis des PUF. En effet, il est apparu que le temps de calcul approcherait environ 5 mois compte tenu des stations de calcul utilisées lors de cette étude (32 cœurs à 2,5 GHz et 512 Go de RAM).

Pour pallier les limitations de la simulation numérique, il a été décidé de développer notre propre modèle de colmatage en se basant en partie sur l'étude expérimentale du colmatage décrite précédemment. La forme du dépôt modifiant considérablement l'écoulement au sein des milieux poreux et affectant ainsi leurs performances, il est apparu par ailleurs crucial pour mener à bien ce projet, de connaitre la morphologie des dépôts de PUF en surface de collecteurs sphériques et dans les pores d'un lit granulaire. Afin de pouvoir réaliser ces observations de dépôts, un dispositif expérimental original utilisant des collecteurs aimantés a été développé. L'emploi de ce type de collecteurs a permis de former des lignes et des nappes de billes (en arrangement carré) sans support interférant dans la formation du dépôt. Les analyses des observations réalisées sur la ligne de billes ont confirmé l'hypothèse d'un dépôt présentant une forme identique sur 360° autour des collecteurs lorsque la diffusion brownienne est le mécanisme de collecte prépondérant. Ces visualisations de dépôt ont également montré que le dépôt prend une forme elliptique avec une épaisseur nulle au niveau des points de contact entre collecteurs du fait d'un débit massique quasi-nul dans ces zones. Les observations visuelles d'obstruction des pores réalisées sur les nappes de billes et corrélées à des mesures de perte de charge ont quant à elles confirmée les hypothèses faites au sujet des trois phases du colmatage observées lors de la première étude expérimentale de ce travail. D'après une comparaison entre l'évolution de la perte de charge de la nappe de billes en fonction du taux de fermeture des pores et celle prédite par une modélisation théorique considérant le dépôt comme imperméable, il a par ailleurs semblé que, durant la première phase, la totalité du débit passe à travers la section libre des pores et qu'à partir d'un taux de fermeture de plus d'environ 80%, une partie du débit commence à s'écouler au travers du dépôt engendrant alors la surestimation de la perte de charge par le modèle. Cette étude expérimentale a également permis de confirmer le phénomène de débouchage des pores sous l'effet de l'augmentation de la perte de charge, un phénomène qui peut par ailleurs aussi participer à la surestimation de la perte de charge de la nappe par la modélisation théorique.

Conclusion générale

Sur la base des résultats des deux études expérimentales réalisées et de données de la littérature, un modèle prédictif de l'évolution de la perte de charge et de l'efficacité de collecte de lits granulaires lors de la filtration en profondeur (phases A et B) a pu être développé. Du fait de l'uniformité du dépôt autour des collecteurs, ce modèle est basé sur l'utilisation de diamètres de collecteur équivalents pour chacune des phases, ces derniers étant recalculés à chaque incrément de masse collectée et injectés à la place du diamètre du collecteur vierge dans les modèles d'efficacité et de perte de charge initiales. Durant la première phase, la faible évolution de la perte de charge et de l'efficacité ainsi que l'imperméabilité du dépôt a conduit à utiliser un diamètre de collecteur équivalent en volume. Lors de la phase B, la forte augmentation de l'efficacité et de la perte de charge ayant été attribuée à celle de la surface spécifique des collecteurs liée à l'accumulation du dépôt des nanoparticules, un diamètre de collecteur équivalent en surface spécifique a donc été défini pour décrire cette seconde phase. Pour calculer ce diamètre, une représentation schématique de la morphologie du dépôt et de la structure géométrique des éléments le composant a dû être imaginée sur la base de nos observations sur la ligne de billes et de données de la littérature (structure dendritique des dépôts de nanoparticules). Afin de rendre prédictif ce modèle, une corrélation semi-empirique a été développée pour déterminer la quantité de dépôt engendrant le passage de la phase A à la phase B. Les comparaisons entre les résultats du modèle et les données expérimentales obtenues en faisant varier les conditions opératoires telles que la vitesse superficielle, le diamètre de collecteurs ou encore le matériau et la taille des particules ont montré un bon accord général. Ce modèle étant par ailleurs basé sur la discrétisation de la profondeur du lit granulaire en fines couches, il a été possible d'obtenir des profils de dépôt théoriques. Grâce à ces profils, il a été mis en évidence qu'une majeure fraction de la masse collectée sur l'ensemble d'un colmatage se situait dans les premiers millimètres du lit granulaire. Seulement une faible profondeur de lit est alors utilisée, raccourcissant la phase de filtration en profondeur, la durée d'utilisation entre deux décolmatages et donc le rendement du procédé.

Pour remédier à ce problème en vue d'une utilisation industrielle des lits granulaires pour la filtration de PUF, il a été décidé de tester un lit granulaire tricouche, dit amélioré, comportant trois étages, chacun étant rempli de billes de diamètre décroissant avec la profondeur (1 mm/0,8 mm/0,5 mm). L'efficacité de filtration étant une fonction décroissante de la taille des collecteurs, ce type de configuration permet en principe de colmater en premier les strates les plus en profondeur du lit granulaire. L'évolution de l'efficacité, de la perte de charge et de la répartition de la masse collectée a été comparée à celle d'une configuration, dite conventionnelle, où les trois étages contenaient des billes de diamètre identique (0,5 mm). Du point de vue de l'utilisation de la profondeur du lit granulaire, il a pu être remarqué que la répartition de la masse collectée est bien meilleure que dans le cas d'un lit granulaire conventionnel. La comparaison des évolutions de perte de charge montre également une amélioration significative puisque la perte de charge du lit à gradient de diamètres de collecteur s'est avérée être 70% plus faible que celle du lit conventionnel à la fin de la phase de filtration en profondeur. En revanche, le diamètre des collecteurs du lit conventionnel étant inférieur à ceux du lit amélioré, l'efficacité initiale de ce dernier est apparue logiquement plus faible (20% inférieure). Ce principe d'amélioration étant prometteur, le modèle de colmatage développé précédemment a été utilisé dans une démarche d'analyse et d'optimisation multicritères (méthode des rough-sets) afin de trouver la combinaison optimale de diamètres de collecteurs tout en s'affranchissant d'un grand nombre d'expériences. En effet, il a pu être observé, qu'avec la combinaison améliorée testée expérimentalement, l'étage 1 devenait trop rapidement efficace par rapport à l'étage 2, la profondeur de ce dernier n'étant alors pas pleinement utilisée. Grâce à cette optimisation multicritère, il a été possible de trouver une configuration pouvant potentiellement permettre l'utilisation de lits granulaires pour la filtration des PUF (0,6 mm/0,4mm/0,2mm).

Cette configuration possède ainsi une efficacité de collecte très élevée (de l'ordre de 95%) et une faible augmentation de perte de charge au cours du colmatage. Du point de vue de la répartition de la masse collectée, cette configuration apparait quasi-idéale puisque chacun des trois étages contient environ 1/3 de la masse totale collectée à la fin de la phase de filtration en profondeur. Des comparaisons avec des données de colmatage de médias fibreux ont permis de conforter ces résultats.
L'amélioration de la durée de fonctionnement globale d'un lit granulaire ne se résumant pas seulement à l'augmentation de sa capacité de rétention, il a fallu également envisager une nouvelle façon de restaurer une perte de charge acceptable. Ce problème a été résolu sur la base d'études préliminaires de la littérature concernant la filtration des fumées de métallisation par lit granulaire qui font état de la faisabilité d'un décolmatage par vibrations ne provoquant aucune resuspension de particules en aval du lit.

Malgré ces résultats très prometteurs, les lits granulaires optimisés ne peuvent être utilisés en l'état pour la filtration industrielle des fumées de métallisation. En effet, la vitesse superficielle doit être assez faible et ramenée à des valeurs proches de celles rencontrées dans les dépoussiéreurs à médias fibreux (i.e., quelques cm/s) pour favoriser la collecte des particules par diffusion brownienne ainsi que pour limiter la perte de charge compte tenu des débits importants à traiter. Pour limiter la vitesse superficielle, il est donc nécessaire d'augmenter drastiquement la surface de filtration (la surface d'entrée du lit granulaire). Pour pallier ce problème, un système de manche granulaire cylindrique a été imaginé sur le principe des cartouches filtrantes actuelles, le filtre à fibres plissé étant remplacé par un lit granulaire. Les premiers essais réalisés sur ce type de lit granulaire ont fournis des résultats intéressants et notamment quant à l'applicabilité du décolmatage par vibrations à cette géométrie particulière. Toujours dans l'objectif d'optimiser le procédé, l'utilisation de billes en polystyrène expansé (PSE) a fait l'objet d'une étude préliminaire ayant montré une augmentation significative de l'efficacité de collecte du fait d'effets électrostatiques importants entres les particules et les collecteurs sans toutefois augmenter la profondeur du lit granulaire ou diminuer le diamètre des collecteurs. L'utilisation de billes de PSE pourrait également s'avérer utile dans un souci de réduction de la masse des installations industrielles utilisant des lits granulaires. En effet, la masse volumique des collecteurs en PSE est comprise le plus souvent entre 10 et 30 kg/m^3 soit entre 750 et 250 fois moins que celle de l'acier inoxydable et 250 à 100 fois moins que celle du verre. Les billes de PSE peuvent enfin présenter des avantages économique et écologique. En effet, ils sont peu coûteux et peuvent par ailleurs provenir de filières de recyclage des emballages de polystyrène expansé.

Les perspectives à donner à ce travail sont multiples. En effet, il serait à présent intéressant d'étudier expérimentalement un lit granulaire optimisé pour la filtration de PUF, i.e., un lit granulaire tricouche optimisé mis sous la forme d'une manche et constitué de collecteurs en polystyrène expansé dont le décolmatage serait effectué par vibrations. Ce dernier point soulève des interrogations vis-à-vis des collecteurs en PSE. En effet, compte tenu de la faible inertie de ces collecteurs, il est possible que le décolmatage ne soit pas aussi efficace qu'avec des collecteurs en acier ou en verre. Enfin, il serait également nécessaire de développer un procédé de recyclage des collecteurs afin de pouvoir les réutiliser après leur remplacement lors de la saturation du lit granulaire par les PUF. Parmi les solutions les plus plausibles figure le lavage par ultrasons présentant l'avantage de piéger les particules dans un liquide plutôt que sous la forme de matériaux hautement pulvérulents comme dans les trémies des dépoussiéreurs à médias fibreux. De plus, il existe actuellement un projet européen (NanoFloc) travaillant à l'élaboration de procédés d'électro-agglomération de nanoparticules en milieu liquide afin de permettre la récupération des matériaux en vue d'une réutilisation ultérieure. Dans le cas spécifique du polystyrène expansé, il existe des procédés relativement simples de dissolution/distillation (Brevet Sony®) permettant de récupérer la

matière première en tant que résidu, i.e. le polystyrène cristal, mais dont on ne connait pas le comportement en présence de matière particulaire. Enfin, la phase ultime de la poursuite de ces travaux serait l'implantation d'un pilote chez un industriel de la métallisation afin de définitivement statuer sur la capacité des lits granulaires à suppléer les filtres à fibres pour la filtration des PUF. Ceci permettrait également d'évaluer l'accueil réservé à cette technique de séparation par le milieu professionnel.

Séparation des particules ultrafines métalliques par lits granulaires

Les particules ultrafines (PUF) sont de nos jours susceptibles de se retrouver massivement dans l'air des lieux de travail et dans l'environnement, notamment de par leur génération non-intentionnelle par certains procédés industriels. Du fait de la toxicité de plus en plus avérée de ces particules, l'air contaminé doit être extrait des lieux de travail et filtré avant d'être rejeté dans l'atmosphère. Les filtres classiquement utilisés sont des filtres à fibres plissés présentant l'inconvénient vis-à-vis des PUF d'être rapidement et irréversiblement colmatés. Afin de trouver une alternative à ces filtres, il a été décidé d'étudier les lits granulaires. Pour ce faire, la cinétique de colmatage des lits granulaires par des PUF a dans un premier temps été étudiée à l'échelle macroscopique et microscopique par suivi des évolutions des performances ainsi qu'en procédant à des observations de structure de dépôt. Evaluer la capacité des lits granulaires à se positionner en tant qu'alternative aux médias fibreux peut nécessiter la connaissance des performances des lits granulaires dans un grand nombre de configurations. Pour s'affranchir des expériences correspondantes, un modèle théorique de prédictions des performances des lits granulaires en cours de colmatage a été développé. Ce modèle a par la suite permis par une optimisation multicritère de trouver la configuration optimale d'un lit granulaire amélioré. Enfin, des essais préliminaires très prometteurs d'une manche granulaire permettant d'augmenter la surface de filtration et l'efficacité de collecte ont posé les bases d'une potentielle utilisation des lits granulaires pour la filtration de PUF dans l'industrie.

Mots clés :

Filtration, Particules ultrafines, Lit granulaire, Colmatage, Perte de charge, Efficacité

Metallic nanoparticles separation by granular bed

The air of workplaces and the environment can be contaminated by ultrafine particles (UFP) coming mainly from a non-intentional generation emitted by some industrial processes. The toxicity of these particles being more and more admitted nowadays, the polluted air of the workplaces has to be extracted and filtered in order to protect the workers and the public, respectively. The commonly used filters are pleated fiber filters which are rapidly and sometimes irreversibly clogged by the UFP. In order to find an alternative to these pleated filters, it was decided to study the granular beds. To do so, the clogging kinetic of granular bed by UFP was studied. This was achieved by conducting both macroscopic and microscopic studies of the granular bed clogging consisting in the monitoring of the evolution of the performances and in performing visualizations of UFP deposit structures. Evaluate the ability of granular beds to be an alternative to fiber filters can require the knowledge of the granular bed performances evolution for a large number of configurations. In order to avoid the realization of the corresponding experiments, a theoretical model was developed. Then, this model permitted by a multi-criteria optimization method to find the optimal configuration of an improved granular bed. Finally, some preliminary and very promising tests of a cylindrical granular bed filter permitting to increase the surface filtration and the collection efficiency laid the groundwork of a potential use of granular beds for the industrial UFP filtration.

Mots clés :

Filtration, Ultrafine particles, Granular bed, Clogging, Pressure drop, Efficiency