



**HAL**  
open science

# Étude et développement de nouveaux medias fibreux à fibres ultrafines : application à la filtration de l'air

Selven Rungiah

► **To cite this version:**

Selven Rungiah. Étude et développement de nouveaux medias fibreux à fibres ultrafines : application à la filtration de l'air. Génie des procédés. Université de Lorraine, 2017. Français. NNT : 2017LORR0021 . tel-01663073

**HAL Id: tel-01663073**

**<https://theses.hal.science/tel-01663073v1>**

Submitted on 13 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.



## 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](mailto: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.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



**Laboratoire Réaction et Génies des procédés (LRGP)**

1 rue Grandville BP 451

54001 Nancy Cédex

**Laboratoire Génie & Matériaux Textiles (GEMTEX)**

2 Allée Louise et Victor Champier

59100 Roubaix

ECOLE DOCTORALE  
RESSOURCES PROCEDES PRODUITS ENVIRONNEMENTS (RP2E)



## THESE

PRESENTÉE ET SOUTENUE PUBLIQUEMENT EN VUE DE L'OBTENTION DU GRADE DE  
**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE**

SPECIALITE  
**GENIE DES PROCEDES ET DES PRODUITS**

# ETUDE ET DEVELOPPEMENT DE NOUVEAUX MEDIAS FIBREUX A FIBRES ULTRAFINES : APPLICATION A LA FILTRATION DE L'AIR

PAR

***SELVEN RUNGIAH***

SOUTENUE PUBLIQUEMENT LE 9 MARS 2017, DEVANT LE JURY COMPOSE DE :

Président	<b>Anne PERWUELZ</b>	Professeur d'Université au GEMTEX
Rapporteurs	<b>Denis BEMER</b> <b>Stephen RUSSELL</b>	Ingénieur d'Etudes à l'INRS Professeur d'Université au NIRI (Leeds)
Examineurs	<b>François LUSTENBERGER</b> <b>Philippe VROMAN</b> <b>Dominique THOMAS</b>	Ingénieur d'Etudes chez Honeywell Maître de Conférences au GEMTEX Professeur d'Université au LRGP
Invité	<b>Jean-Christophe APPERT-COLLIN</b>	Maître de Conférences au LRGP



# REMERCIEMENTS

Mes premiers remerciements sont adressés aux personnes qui m'ont encadré ces trois dernières années : Philippe Vroman qui m'a fait découvrir le monde du nontissé, et Dominique Thomas et Jean-Christophe Appert-Collin qui m'ont transmis leurs savoirs en filtration de l'air. Vous avez notamment su me guider tout en me laissant une grande autonomie tout au long du projet. De plus, votre rigueur m'a permis de progresser dans ma démarche scientifique aussi bien dans l'analyse que dans la rédaction.

Je souhaite remercier les membres du jury, Anne Perwuelz, Denis Bémer, Stephen Russell et François Lustenberger pour l'attention qu'ils ont portée à mon travail et pour leurs remarques pertinentes.

Je tiens à remercier particulièrement le LRGP et le GEMTEX pour m'avoir accueilli dans leur structure, me permettant de réaliser cet ambitieux projet et de rencontrer des gens extraordinaires avec qui j'ai pu partager des moments tout aussi extraordinaires.

Merci à l'équipe SAFE : François, David, Carlos, Miriam, Loïc, Quentin, Guillemette, Charlotte, Florine, Sabrina, Youssef, Augustin, Nathalie, Olivier, Cécile, Léa, Stéphanie ; aux potes nancéiens : Marc, Etienne, Tsilla, David (grand), François, Mathilde, Jérémy, JP, Mathieu, Daniela, Riadh, Kevin, Juan, Luc, Maxime, Grégoire, Aurélien, Edouard, Felipe, Darwin et Zineb ; aux potes roubaisiens : Boris, Melsh, SAV, Piquette, Tarun, Edwin, Manel, Taha, Wael, Asley, Amandine et Constance ; mes potes de toujours : Sean, Valentin et Mickey ; et à tous ceux avec qui j'ai pu rire.

Un grand merci également aux différentes personnes du CETI et tout particulièrement à Anne, Julien, Moussa et Ludovic qui par leurs conseils, expertises, présences ont permis la réalisation d'essais efficaces dans la bonne humeur.

Merci à tous ceux qui m'ont accompagné à différents moments de la thèse : Amélie, Rei, Domitille, Sara, Aurélie Cayla, Guillaume Lemort, Christian Catel, Christine Campagne, Eric Devaux, Séverine Ballayer, Jean-François Remy et Kévin Mozet.

Mes remerciements vont également à ma famille pour le soutien qu'elle m'a toujours témoigné.

Enfin, une pensée toute particulière à Daphné qui me supporte depuis plusieurs années déjà.

# TABLE DES MATIERES

<b>Remerciements</b> .....	<b>i</b>
<b>Table des matières</b> .....	<b>ii</b>
<b>Table des figures</b> .....	<b>vi</b>
<b>Table des tableaux</b> .....	<b>x</b>
<b>Listes des symboles</b> .....	<b>xii</b>
<b>Nomenclature</b> .....	<b>xv</b>
<b>Introduction générale</b> .....	<b>1</b>
<b>Chapitre 1: Etat de l'art des médias fibreux à fibres submicroniques en filtration de l'air</b> .....	<b>7</b>
<i>1.1 Généralité sur les médias fibreux</i> .....	7
1.1.1 Définition d'un média fibreux nontissé.....	7
1.1.2 Quelques chiffres .....	8
1.1.3 Techniques de fabrication des nontissés .....	9
1.1.4 Grandeurs caractéristiques d'un média fibreux.....	11
1.1.4.1 Masse surfacique.....	11
1.1.4.2 Épaisseur .....	12
1.1.4.3 Compacité.....	12
1.1.4.4 Diamètre moyen des fibres .....	13
1.1.4.5 Longueur spécifique de fibre.....	14
1.1.4.6 Surface spécifique des fibres .....	14
1.1.4.7 Orientation des fibres .....	14
1.1.4.8 Uniformité de répartition des fibres .....	14
1.1.4.9 Nature des fibres et mélanges.....	15
1.1.4.10 Morphologie des fibres.....	15
1.1.4.11 Structures complexes.....	15
1.1.5 Exemple d'applications des médias fibreux en filtration de l'air .....	15
1.1.5.1 Filtres industriels.....	16
1.1.5.2 Filtres air moteur.....	16
1.1.5.3 Masques respiratoires à usage unique.....	17
<i>1.2 Théorie de la filtration de l'air par des médias fibreux</i> .....	19
1.2.1 Perte de charge d'un média fibreux.....	19
1.2.1.1 Définition de la perte de charge .....	19
1.2.1.2 Écoulement dans un média fibreux .....	19
1.2.1.3 Facteur de Knudsen .....	21
1.2.1.4 Effet de glissement du fluide .....	21
1.2.2 Efficacité .....	22
1.2.2.1 Définition de l'efficacité .....	22
1.2.2.2 Efficacité de collecte d'un média fibreux.....	23
1.2.2.3 Écoulement autour d'une fibre ou d'un ensemble de fibres.....	23
1.2.2.4 Mécanismes de capture des particules .....	24
1.2.3 Intérêt et performances des fibres submicroniques en filtration de l'air .....	30
<i>1.3 Etat de l'art des méthodes de fabrication de structures avec des fibres submicroniques</i> .....	33
1.3.1 Electrospinning.....	34
1.3.1.1 Historique de l'électrospinning.....	34
1.3.1.2 Principe de l'électrospinning.....	34
1.3.1.3 Variantes de l'électrospinning .....	35
1.3.2 Médias fibreux à fibres de verre obtenus par voie humide .....	36

1.3.3 Procédé « nano » meltblown.....	37
1.3.3.1 Historique du procédé meltblown .....	37
1.3.3.2 Principe du procédé « nano » meltblown .....	38
1.3.4 Fibres bicomposantes îles-en-mer.....	39
1.3.4.1 Historique de l'utilisation des fibres bicomposantes .....	39
1.3.4.2 Principe d'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer afin d'obtenir des fibres ultrafines .....	41
1.3.5 Autres méthodes.....	43
1.3.5.1 Le Rotor-spinning ou Force-spinning©.....	43
1.3.5.2 Template synthesis.....	44
1.3.5.3 Self-assembly.....	44
1.3.5.4 Séparation de phase .....	45
1.3.5.5 Drawing.....	45
1.3.6 Comparaison des méthodes .....	46
1.4 Conclusion.....	49
<b>Chapitre 2: Étude et développement de média à fibres ultrafines à partir du procédé «nano» meltblown.....</b>	<b>50</b>
2.1 Matériels et méthodes de caractérisation.....	51
2.1.1 Description détaillée du procédé meltblown du CETI en configuration « nano » .....	51
2.1.2 Paramètres d'une filière « nano » meltblown .....	53
2.1.2.1 Capillaires : géométrie et densité linéaire .....	53
2.1.2.2 Géométrie de la filière : angle de soufflage, « air gap » et « set back ».....	54
2.1.3 Principaux paramètres étudiés du procédé meltblown .....	55
2.1.3.1 Débit de polymère .....	55
2.1.3.2 Température de filage et de la filière.....	55
2.1.3.3 Température et vitesse de l'air primaire .....	56
2.1.3.4 Distance entre capillaire et collecteur (DCD).....	56
2.1.3.5 Vitesse du collecteur et taux d'aspiration sous collecteur .....	57
2.1.4 Choix et propriétés des polymères utilisés .....	58
2.1.4.1 Nature des polymères.....	58
2.1.4.2 Viscosité à l'état fondu du polymère .....	58
2.1.5 Méthodes de caractérisations des médias fibreux.....	59
2.1.5.1 Masse surfacique, épaisseur et compacité.....	59
2.1.5.2 Diamètre moyen des fibres .....	59
2.2 Étude des paramètres du procédé meltblown .....	62
2.2.1 Objectifs des essais.....	62
2.2.2 Plan d'expériences principal PLEX1 .....	62
2.2.3 Analyse des résultats du PLEX1 .....	65
2.2.3.1 Influence sur le diamètre des filaments .....	65
2.2.3.2 Influence sur la distribution du diamètre des filaments (CV%).....	66
2.2.3.3 Influence sur la compacité du média .....	67
2.2.4 Plan d'expériences complémentaire PLEX2 : débit vs débit d'air primaire .....	70
2.2.5 Analyse des résultats du PLEX2 .....	71
2.2.6 Conclusion sur l'étude de l'influence des paramètres procédé.....	72
2.2.7 Analyse de l'hétérogénéité du voile.....	72
2.3 Influence du polymère (de la viscosité à l'état fondu du polymère).....	75
2.3.1 Objectifs des essais.....	75
2.3.2 Polymères et conditions des essais du PLEX3 .....	76
2.3.3 Analyse des résultats du PLEX3 .....	77

2.3.3.1 Influence sur le diamètre des filaments .....	77
2.3.3.2 Influence sur la distribution du diamètre des filaments.....	78
2.3.3.3 Influence sur la compacité du média .....	79
2.3.4 Conclusion de l'étude de l'influence de la viscosité à l'état fondu du polymère.....	80
2.4 Conclusions et perspectives.....	81
<b>Chapitre 3: Étude et développement de médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés à fibres submicroniques.....</b>	<b>83</b>
3.1 Matériels et méthodes de caractérisations .....	85
3.1.1 Procédé bicomposant spunbond îles-en-mer utilisé au CETI.....	85
3.1.1.1 Présentation du procédé spunbond bicomposant îles-en-mer .....	85
3.1.2 Procédé d'hydrofracturation utilisé au CETI.....	85
3.1.2.1 Présentation du procédé d'hydroliage.....	85
3.1.3 Méthodes de caractérisations des médias fibreux.....	87
3.1.3.1 Masse surfacique, épaisseur, compacité.....	87
3.1.3.2 Perméabilité.....	87
3.1.3.3 Diamètre des fibres.....	88
3.1.3.4 Qualité de fracturation des fibres.....	88
3.2 Etude de la qualité d'hydrofracturation des fibres et du média fibreux .....	92
3.2.1 Objectifs des essais.....	92
3.2.1.1 Influence des paramètres sur l'hydrofracturation .....	92
3.2.1.2 Ratio îles/mer .....	95
3.2.1.3 Pression des jets d'eau .....	96
3.2.1.4 Obtention des îles les plus fines .....	97
3.2.1.5 Bilan des paramètres sélectionnés et caractéristiques étudiées.....	98
3.2.2 Polymères utilisés et conditions des essais .....	99
3.2.2.1 Production des structures et fracturation par hydroliage .....	100
3.2.3 Analyse des résultats du plan d'expériences.....	105
3.2.3.1 Analyse de l'hydrofracturation des filaments îles-en-mer.....	105
3.2.3.2 Influence du couple de polymères, du ratio île/mer et de la pression d'hydroliage sur le taux de fracturation.....	109
3.2.3.3 Influence de la pression d'hydroliage sur les caractéristiques de structures (Masse surfacique, épaisseur, compacité et perméabilité).....	112
3.2.4 Conclusion.....	116
3.3 Stratégie de diminution de l'énergie d'hydrofracturation par utilisation et dégradation du PLA en mer .....	117
3.3.1 Contexte et objectifs de l'étude.....	117
3.3.2 Principe de dégradation du PLA .....	117
3.3.3 Polymères utilisés et conditions des essais .....	117
3.3.4 Analyse des résultats.....	120
3.3.4.1 Validation de la dégradation par DSC.....	120
3.3.4.2 Qualité de l'hydrofracturation des fibres.....	121
3.3.5 Conclusion.....	123
3.4 Conclusions et perspectives.....	124
<b>Chapitre 4: Caractérisations et modélisation des propriétés de filtration des médias développés avec prise en compte de l'hétérogénéité.....</b>	<b>126</b>
4.1 Caractérisation des propriétés de filtration .....	128
4.1.1 Description du banc de filtration .....	128

4.1.1.1	Méthode de mesure de la perte de charge et du calcul de la perméabilité k du média.....	129
4.1.1.2	Méthode de mesure de l'efficacité du média.....	129
4.1.2	Validation de l'intérêt des fibres ultrafines.....	130
4.1.3	Propriétés de filtration des médias produits.....	133
4.1.3.1	Bornes des caractéristiques des médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés testés en filtration.....	133
4.1.3.2	Cartographie des propriétés de filtration.....	134
4.1.3.3	Efficacité recalculée pour une même perte de charge.....	135
4.2	<i>Modélisation des propriétés de filtration.....</i>	<i>137</i>
4.2.1	Modélisation de la perméabilité.....	137
4.2.1.1	Modélisation de la perméabilité des médias « nano » meltblown.....	137
4.2.1.2	Modélisation de la perméabilité des structures spunbond îles-en-mer fracturées par hydroliage.....	140
4.2.1.3	Conclusion de la modélisation de la perméabilité.....	141
4.2.2	Modélisation de l'efficacité.....	141
4.2.2.1	Modèle d'efficacité sans prise en compte de l'hétérogénéité appliqué sur aux médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés.....	142
4.2.2.2	Modèle d'efficacité avec la prise en compte de l'hétérogénéité appliqué aux médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés.....	143
4.2.2.3	Application du facteur de correction pour la prise en compte de l'hétérogénéité.....	145
4.3	<i>Conclusions et perspectives.....</i>	<i>151</i>
	<b>Conclusions générales et perspectives.....</b>	<b>153</b>
	<b>Bibliographie.....</b>	<b>156</b>
	<b>Annexe A : Modélisation de la perméabilité.....</b>	<b>163</b>
	<b>Annexe B : Modélisation de l'efficacité.....</b>	<b>167</b>
	<b>Résumé de la thèse.....</b>	<b>179</b>

# TABLE DES FIGURES

Figure 0-1 – Épisode de « smog » à Almaty au Kazakhstan (Wikipedia 2005) .....	1
Figure 0-2 – Diamètre des particules en fonction de leur source (World Health Organisation 2006) .....	3
Figure 0-3 – Augmentation de mortalité liée aux PM 10 (World Health Organisation 2006) .....	3
Figure 0-4 – Membres du projet FILAIRCO selon leurs spécialités .....	5
Figure 1-1 – Production de nontissés en Europe, en Asie, en Amérique du Nord et dans le reste du monde en 2001, 2006 et 2011 (Prigneaux 2012) .....	8
Figure 1-2 – Production de nontissés en Europe de 2000 à 2014 en milliers de tonnes (EDANA 2016a).....	8
Figure 1-3 – Production de 2000 à 2014 de nontissés en millier de tonnes en Europe répartie en 19 secteurs d'activités (EDANA 2016a) .....	9
Figure 1-4 – Vue d'ensemble des techniques de fabrication des nontissés (Payen et al. 2009; Wilson 2006) .....	10
Figure 1-5 – Production 2014 en Europe de nontissés par voie de fabrication en milliers de tonnes (EDANA 2016a) .....	11
Figure 1-6 – Section d'une fibre avec une surface élevée .....	15
Figure 1-7 – Manche filtrante (Mortelecque 2016).....	16
Figure 1-8 – Filtre air moteur (Wikipedia 2016).....	17
Figure 1-9 – Photo d'un demi-masque respiratoire FFP2 .....	17
Figure 1-10 – Illustration de l'effet de glissement .....	22
Figure 1-11 – Allure d'efficacité fractionnelles d'un média fibreux en fonction de la taille des particules	25
Figure 1-12 – Schéma du mécanisme de diffusion brownien .....	25
Figure 1-13 - Schéma du mécanisme d'interception directe.....	27
Figure 1-14 - Schéma du mécanisme d'impaction inertielle.....	28
Figure 1-15 - Schéma du mécanisme de capture par des forces électrostatiques.....	29
Figure 1-16 – Efficacité à iso perte de charge (100 Pa) en fonction du diamètre moyen des filaments avec et sans effet de glissement. ....	32
Figure 1-17 – Perte de charge à iso efficacité (80%) en fonction du diamètre moyen des filaments avec et sans effet de glissement. ....	32
Figure 1-18 – Principe du procédé d'électrospinning.....	34
Figure 1-19 – Photo d'un procédé industriel d'électrospinning Nanospider™.....	36
Figure 1-20- Schéma du procédé meltblown .....	38
Figure 1-21 – Vue de dessus d'une structure meltblown .....	39
Figure 1-22 – Vue de dessus de fibres meltblown .....	39
Figure 1-23 – Section de fibres bicomposantes .....	40
Figure 1-24- Schéma d'une fibre îles-en-mer.....	41
Figure 1-25 – Possibilité d'obtention de fibres ultrafines à partir de fibres bicomposantes îles-en-mer ....	42
Figure 1-26 –Vue d'une structure spunbond îles-en-mer avec une fracturation par hydroliage importante (a) : coupe en section (b) : vue de dessus.....	43
Figure 1-27 - Mécanisme de formation des fibres via le procédé force-spinning (Raghavan et al. 2013) ....	43
Figure 1-28 – Schéma de formation de fibres ultrafines par la méthode Template synthesis (Liu 2016) ....	44
Figure 1-29 – Schéma de formation de fibres ultrafines par la méthode Self-assembly (Jun et al. 2006).....	45
Figure 1-30 – Schéma de formation de fibres ultrafines par séparation de phases .....	45
Figure 1-31 – Schéma de formation de fibres ultrafines par la méthode Drawing .....	46
Figure 2-1- Schéma d'un procédé meltblown bicomposant.....	51
Figure 2-2 – Schéma détaillé d'une filière meltblown.....	52
Figure 2-3 – Principaux paramètres étudiés du procédé meltblown.....	55
Figure 2-4 – Image MEB d'une même structure meltblown à différents grossissements.....	59
Figure 2-5 – Exemples de distribution de diamètre de filaments pour trois structures meltblown différentes .....	60

Figure 2-6 – Démarche d'étude de l'influence des paramètres en ligne sur les caractéristiques de structures .....	63
Figure 2-7 – Diagramme des interactions entre le débit de polymères (x1) et le débit d'air primaire (x2) .....	66
Figure 2-8 – Coefficient de variation CV% dans les différentes configurations du plan d'expériences pour des températures de filage de 242°C et 255°C.....	67
Figure 2-9 – Diagramme des interactions pour la compacité du média .....	68
Figure 2-10 – Cône formé par les filaments en sortie de filière.....	69
Figure 2-11 – Diamètre des filaments en fonction du débit d'air à 4 débits de polymères différents.....	71
Figure 2-12 – Scan d'un média meltblown avec une uniformité moyenne et des lignes de défaut verticales (échantillon A).....	73
Figure 2-13 - Scan d'un média meltblown avec une uniformité mauvaise .....	73
Figure 2-14 – Scan d'un média meltblown avec une bonne uniformité, mais des lignes de défauts .....	74
Figure 2-15- Scan d'un média meltblown avec une uniformité moyenne .....	74
Figure 2-16 - Démarche d'étude de l'influence de la viscosité à l'état fondu du polymère sur les caractéristiques de structures.....	75
Figure 2-17 – Médiane des diamètres de filaments pour différentes configurations meltblown à pour une viscosité à l'état fondu élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min.....	78
Figure 2-18 – Coefficient de variation des diamètres de filaments pour différentes configurations meltblown pour une viscosité à l'état fondu élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min.....	79
Figure 2-19 – Compacité dans différentes configurations meltblown pour une viscosité à l'état fondu élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min .....	79
Figure 3-1- Schéma du procédé spunbond .....	85
Figure 3-2 – Parcours des jets d'eau d'hydroliage dans un voile de fibres .....	86
Figure 3-3 – Formation des jets d'eau par une lame d'hydroliage à l'intérieur d'un injecteur.....	86
Figure 3-4 – Procédé d'hydroliage du CETI .....	87
Figure 3-5 – Banc d'essai de filtration du LRGP utilisé pour la mesure de perméabilité .....	88
Figure 3-6 – Exemple d'isotherme de sorption d'un échantillon spunbond îles-en-mer fracturé par hydroliage.....	89
Figure 3-7 – Monocouche de molécules adsorbées sur la surface d'un échantillon (Rouquerol & Luciani 2003).....	90
Figure 3-8 – Schéma de la fracturation des fibres îles-en-mer .....	90
Figure 3-9 – Phénomène d'encapsulation (Ayad et al. 2016) .....	93
Figure 3-10 – Simulation du diamètres des îles en fonction du nombre d'îles, du diamètre du filament ( $d_f$ ) et du ratio île/mer .....	98
Figure 3-11 – Relation propriété/structure/procédé/polymère pour les structures spunbond îles-en-mer hydrofracturées .....	99
Figure 3-12 – Couple transversale d'un filament îles-en-mer I/S PA6/PE 25I composé de 37 îles avant étirage .....	101
Figure 3-13 - Couple transversale d'un filament îles-en-mer I/S PA6/PE 50I composé de 37 îles après étirage .....	101
Figure 3-14 – Positionnement des injecteurs par rapport aux structures spunbond.....	102
Figure 3-15 – Echantillon faiblement fracturé en vue de dessus (I/S PP/PLA I75 50 bars) .....	105
Figure 3-16 – Echantillon fortement fracturé en vue de dessus (I/S PP/PLA I75 200 bars) .....	105
Figure 3-17 – Vue en coupe d'une structure spunbond îles-en-mer hydrofracturée (I/S PP/PLA 75I 200 bars).....	106
Figure 3-18 - Section d'une structure spunbond îles-en-mer fracturée par hydroliage (I/S PE/PA6).....	106
Figure 3-19 – Section d'échantillon fibre îles-en-mer où les îles constituent un amas (I/S PP/PLA) .....	106
Figure 3-20 – Section d'échantillon fibre îles-en-mer (I/S PE/PA6) .....	107

Figure 3-21 – Taux de fracturation estimé en fonction du ratio île/mer (ratio I/S 25/75 et 75/25) pour trois couples de polymères (I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA) à des pressions de jets d'eau comprises entre 50 et 300 bars).....	109
Figure 3-22 – Etat de la structure fibreuse pour différentes pressions d'hydrofracturation de 50 à 250 bars sur un échantillon spunbond I/S PP/PLA 75/25.....	110
Figure 3-23 – I/S 25/75 PP/PLA 200 bars.....	111
Figure 3-24 – I/S 75/25 PP/PLA 200 bars.....	111
Figure 3-25 – Évolution de la masse surfacique du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau ...	112
Figure 3-26 – Évolution de l'épaisseur du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau .....	113
Figure 3-27 – Évolution de la compacité du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau .....	114
Figure 3-28 – Évolution de la perméabilité du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau .....	114
Figure 3-29 – I/S 75/25 PE/PA6 100 bars.....	115
Figure 3-30 – I/S 75/25 PE/PA6 250 bars.....	115
Figure 3-31 – I/S 75/25 PA6/PE 250 bars.....	115
Figure 3-32 – I/S 75/25 PA6/PE 300 bars.....	115
Figure 3-33 – Schéma de l'hydrolyse sur les chaînes de PLA.....	117
Figure 3-34 – Enceinte climatique CLIMATS (ENSAIT) .....	118
Figure 3-35 – Évolution de la température de transition vitreuse en fonction de la durée de la dégradation .....	120
Figure 3-36 – Image MEB de vues de dessus de structures spunbond sans dégradation et avec dégradation .....	121
Figure 3-37 – Évolution de la fracturation en fonction de la durée de dégradation à une pression d'hydroliage de 200 bars .....	122
Figure 3-38 – Taux de fracturation en fonction du temps de dégradation .....	123
Figure 4-1 – Banc d'essai de filtration du LRGP .....	128
Figure 4-2 – Distribution du nombre de particules de NaCl en fonction du diamètre des particules .....	129
Figure 4-3 – Efficacité spectrale d'un média fibreux .....	129
Figure 4-4 – Facteur de qualité en fonction du diamètre des filaments.....	131
Figure 4-5 – Evolution de l'efficacité en fonction du diamètre des filaments pour une même perte de charge (20 Pa) .....	132
Figure 4-6 – Evolution de la perte de charge en fonction du diamètre des filaments pour une même efficacité de 80% .....	132
Figure 4-7 – Efficacité en fonction de la perte de charge pour les médias meltblown avec des fibres dont le diamètre médian (dM) inférieur à 1 µm, le diamètre médian compris entre 1 et 1,5 µm et le diamètre médian est supérieur à 1,5 µm et les médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés.....	135
Figure 4-8 – Efficacité recalculée en fonction de la masse surfacique d'une superposition de médias atteignant une perte de charge de 3 mbar pour les médias « nano » meltblown, meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés .....	136
Figure 4-9 - Perméabilité théorique de Davies en fonction de la perméabilité expérimentale.....	138
Figure 4-10 - Perméabilité théorique de Jackson et James en fonction de la perméabilité expérimentale	138
Figure 4-11 - Perméabilité théorique de Sakano et al. en fonction de la perméabilité expérimentale .....	138
Figure 4-12 – Boîtes à moustache des écarts relatifs des échantillons « nano » meltblown pour le modèle de Davies, de Sakano et al. et de Jackson et James .....	140
Figure 4-13 - Perméabilité théorique en fonction de la perméabilité expérimentale pour la perméabilité de Davies.....	141
Figure 4-14 - Perméabilité théorique en fonction de la perméabilité expérimentale et la perméabilité de Jackson et James .....	141
Figure 4-15 – Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour les 5 modèles d'efficacité : le modèle de Miecret-Gustavsson, de Lee-Liu, de Liu-Rubow, de Payet, de Gougeon, de Stechkina et al. et Kirsch et al. pour une vitesse de filtration $V_f$ de 5 cm/s et un diamètre des particules $d_p$ de 0,3 µm .....	142

Figure 4-16 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Kirsch et al.	146
Figure 4-17 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Miecret-Gustavsson ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	147
Figure 4-18 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Lee-Liu ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	147
Figure 4-19 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Liu-Rubow ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	147
Figure 4-20 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Payet ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	147
Figure 4-21 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Gougeon ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	148
Figure 4-22 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Stechkina et al. ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	148
Figure 4-23 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Kirsch et al. ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	148
Figure 4-24 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Miecret-Gustavsson ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	149
Figure 4-25 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Lee-Liu ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	149
Figure 4-26 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Liu-Rubow ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	149
Figure 4-27 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Payet ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	149
Figure 4-28 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Gougeon ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	150
Figure 4-29 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Stechnina et al. ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	150
Figure 4-30 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Kirsch et al. ( $V_f = 5\text{cm/s}$ , $d_p = 0,3\ \mu\text{m}$ )	150

# TABLE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 – Exigences de la norme EN149:2009 .....	18
Tableau 1-2 – Expression de $f(\alpha)$ dans la littérature (Thomas 2001).....	20
Tableau 1-3 – Régime d'écoulement en fonction du facteur de Knudsen .....	21
Tableau 1-4 – Coefficients A, B et C de Cunningham dans la littérature .....	22
Tableau 1-5 – Expression du paramètre hydrodynamique dans la littérature (Thomas 2001) .....	24
Tableau 1-6 – Expression de l'efficacité unitaire de diffusion $\eta_d$ (Thomas 2001) .....	26
Tableau 1-7 - Expression de l'efficacité unitaire d'interception directe $\eta_r$ (Thomas 2001).....	27
Tableau 1-8 - Expression de l'efficacité unitaire d'impaction inertielle $\eta_i$ (Thomas 2001) .....	28
Tableau 1-9 - Expression de l'efficacité unitaire globale $\eta_{th}$ .....	30
Tableau 1-10 – Conditions de simulations des performances de filtration.....	31
Tableau 1-11 – Entreprises dans le marché des fibres submicroniques .....	33
Tableau 1-12 – Polymères Meltblown (Bhat & Malkan 2006; Dutton 2008) .....	39
Tableau 1-13 - Comparaison des différentes techniques de fabrication de fibres submicroniques .....	48
Tableau 2-1 – Caractéristiques polymères meltblown utilisées pour l'étude de l'influence des paramètres en ligne sur les caractéristiques de structures .....	62
Tableau 2-2 – Niveaux des facteurs du plan d'expériences .....	63
Tableau 2-3 – Configurations du procédé meltblown et caractéristiques des structures pour l'étude de l'influence du débit de polymère, du débit d'air sur la structure, de la DCD et de la température du polymère sur les caractéristiques de structures.....	64
Tableau 2-4 – Analyse de variance de l'influence du débit de polymères, débit d'air primaire, DCD et température de filage sur le diamètre moyen des filaments (médiane des diamètres) .....	65
Tableau 2-5 – Analyse de variance de l'influence du débit de polymères, débit d'air primaire, DCD et température de filage sur le coefficient de la variation du diamètre des filaments $CV\%$ .....	66
Tableau 2-6 – Analyse de variance de l'influence du débit de polymères, débit d'air primaire, DCD et température de filage sur la compacité.....	68
Tableau 2-7 – Configurations du procédé meltblown et caractéristiques des structures pour l'étude de l'influence du débit de polymère et du débit d'air sur la structure. ....	70
Tableau 2-8 – Caractéristiques de médias scannés pour l'observation de la qualité de répartition de matière.....	73
Tableau 2-9 – Caractéristiques des polymères meltblown utilisés pour l'étude de l'influence de la viscosité sur les caractéristiques de structures.....	76
Tableau 2-10 - Configurations du procédé meltblown et les caractéristiques des structures pour l'étude de l'influence de la fluidité du polymère sur la structure. ....	76
Tableau 3-1 – Propriétés mécaniques de différents polymères usuels en filage (Crompton 2012; Wyart 2014) .....	94
Tableau 3-2 – Caractéristiques des polymères.....	100
Tableau 3-3 – Caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer avant hydrofracturation .....	100
Tableau 3-4 – Conditions d'hydrofracturation des structures spunbond îles-en-mer .....	103
Tableau 3-5 – Caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer après fracturation.....	104
Tableau 3-6 – Comparaison des surfaces spécifiques et diamètres de filaments mesurés par microscope optique, dispositif BET au LRGP et dispositif BET de Quantachrome Instruments (QI) .....	109
Tableau 3-7 – Caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer avant hydroliage et dégradation ...	118
Tableau 3-8 – Conditions de l'enceinte climatique et condition d'hydroliage pour chacune des structures dégradées .....	118
Tableau 3-9 – Caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer dégradées et hydrofracturées .....	119
Tableau 4-1 – Caractéristiques des médias meltblown pour l'observation de l'effet de glissement .....	130
Tableau 4-2 – Récapitulatif des bornes des caractéristiques et des simulations de la perméabilité pour les médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés.....	133

Tableau 4-3 – Récapitulatif des bornes des caractéristiques et des simulations de l'efficacité pour les médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydro-fracturées.....	134
Tableau 4-4 - Ecart relatif moyen entre les perméabilités théoriques et expérimentales (« nano » meltblown).....	139
Tableau 4-5 - Ecart relatif moyen entre les perméabilités théoriques et expérimentales (spunbond îles-en-mer hydro-fracturées).....	141
Tableau 4-6 - Erreurs relatives des moyennes entre l'efficacité théorique et expérimentale pour les structures meltblown avec le modèle de perméabilité de Davies.....	146
Tableau 4-7 - Erreurs relatives des moyennes entre l'efficacité théorique et expérimentale pour les structures meltblown avec le modèle de perméabilité de Davies.....	148
Tableau 4-8 – Erreurs relatives des moyennes entre l'efficacité théorique et expérimentale pour les structures spunbond îles-en-mer fracturées par hydroliage.....	151

## LISTES DES SYMBOLES

$a_f$	Surface spécifique du média fibreux	(m <sup>2</sup> /m <sup>3</sup> )
$b$	Largeur du voile	
$C_{amont}$	Concentration de particules en amont	(kg/m <sup>3</sup> )
$C_{aval}$	Concentration de particules en aval	(kg/m <sup>3</sup> )
$C_d$	Coefficient de décharge des lames d'hydroliage	(-)
$C_u$	Coefficient de correction de Cunningham	(-)
$CV\%$	Coefficient de variation	(-)
$D$	Diamètre des capillaires de la filière du procédé meltblown	(m)
$dA$	Surface exposée à la filtration	(m <sup>2</sup> )
$d_{buse}$	Diamètre des trous des lames d'hydroliage	(m)
$d_{buse,i}$	Diamètre des trous des lames d'hydroliage pour l'injecteur $i$	(m)
$D_{diff}$	Coefficient de diffusion	(m <sup>2</sup> /s)
$d_f$	Diamètre moyen des fibres	(m)
$d_{\bar{j}}$	Diamètre moyen des fibres de classe $j$	(m)
$dL$	Longueur totale de fibres	(m)
$d_M$	Médiane de la distribution des diamètres de filaments (Diamètre médian)	(m)
$dn/dt$	Nombre de particules collectées par unité de temps	(1/s)
$d_p$	Diamètre des particules	(m)
$dS_{fibres}$	Surface des fibres unité	(m <sup>2</sup> )
$dV_f$	Volume unité	(m <sup>3</sup> )
$dz$	Epaisseur unité	(m)
$E$	Efficacité d'un média fibreux	(-)
$E(d_p)$	Efficacité pour une taille de particules $d_p$	(-)
$E_{exp}$	Efficacité expérimentale	(-)
$E_{th}$	Efficacité théorique	(-)
$f(\alpha)$	Paramètre adimensionnel de perméabilité	(-)
$F_{exp}$	Force de trainée expérimentale	(N)
$F_{impact}$	Force d'impact des jets d'eau	(N)
$F_{th}$	Force de trainée théorique	(N)
$IQ$	Espace interquartile	(-)
$H$	Facteur hydrodynamique	(-)
$H_{Fan}$	Facteur hydrodynamique de Kirsch et Stechkina	(-)
$H_{Ha}$	Facteur hydrodynamique de Happel	(-)
$h_k$	Coefficient de Kozeny-Carman	(-)
$H_{ku}$	Facteur hydrodynamique de Kuwabara	(-)
$H_{pi}$	Facteur hydrodynamique de Pich	(-)
$H_{Ye}$	Facteur hydrodynamique de Yeh et Liu	(-)
$K$	Energie spécifique d'hydroliage	(J/kg)
$k$	Perméabilité	(m <sup>2</sup> )

$k_{\text{corrigée}}$	Perméabilité corrigée par le facteur de Cunningham	(m <sup>2</sup> )
$k_B$	Constante de Boltzmann	(J/K)
$k_{\text{exp}}$	Perméabilité expérimentale	(m <sup>2</sup> )
$k_f$	Perméabilité de Forchheimer	(m <sup>2</sup> )
$Kn_p$	Nombre de Knudsen relatif à la particule	(-)
$Kn_f$	Nombre de Knudsen relatif aux fibres	(-)
$k_{\text{théo}}$	Perméabilité théorique	(m <sup>2</sup> )
$L$	Longueur des capillaires de la filière du procédé meltblown	(m)
$L_{\text{exp}}$	Longueur spécifique réelle de fibre par unité de surface du média fibreux	(m/m <sup>2</sup> )
$L_{\text{th}}$	Longueur spécifique théorique de fibre par unité de surface du média fibreux	(m/m <sup>2</sup> )
$M$	Nombre d'injecteur	(-)
$M_s$	Masse surfacique du média fibreux	(g/m <sup>2</sup> )
$N$	Nombre de classes de diamètre de filaments	(-)
$N_{\text{amont}}(d_p)$	Nombre de particules de diamètre $d_p$ en amont du filtre	(-)
$N_{\text{aval}}(d_p)$	Nombre de particules de diamètre $d_p$ en aval du filtre	(-)
$n_i$	Nombre de jets d'eau par injecteur	(-)
$P$	Pénétration de particules d'un média fibreux	(-)
$P_{\text{amont}}$	Pression amont	(Pa)
$P_{\text{aval}}$	Pression aval	(Pa)
$Pe$	Nombre de Péclét	(-)
$P_{\text{jets}}$	Pression des jets d'eau	(Pa)
$P_{\text{jets},i}$	Pression des jets d'eau de l'injecteur $i$	(Pa)
$Q$	Facteur de qualité	(1/Pa)
$r$	Rayon des fibres	(m)
$R_{\text{écoulement}}$	Résistance à l'écoulement	(1/m)
$R$	Nombre d'interceptions	(-)
$Stk$	Nombre de Stokes	(-)
$S_{\text{fibres}}$	Surface des fibres	(m <sup>2</sup> )
$T$	Température	(K)
$V_b$	Vitesse du tapis du procédé d'hydroliage	(m/s)
$V_f$	Vitesse superficielle ou vitesse du fluide en fût vide	(m/s)
$V_{\text{fibres}}$	Volume des fibres d'un média fibreux	(m <sup>3</sup> )
$V_{\text{pores}}$	Volume des pores d'un média fibreux	(m <sup>3</sup> )
$V_{\text{total}}$	Volume total d'un média fibreux	(m <sup>3</sup> )
$V_i$	Vitesse interstitielle	(m/s)
$Z$	Épaisseur du média fibreux	(m)
$z_i$	Fraction massique	(-)
$\alpha$	Compacité du média fibreux	(-)
$\beta$	Facteur de correction de l'efficacité	(-)
$\Delta P$	Perte de charge	(Pa)
$\epsilon$	Porosité du média fibreux	(-)
$\eta_{\text{corrigée}}$	Efficacité unitaire corrigée	(-)

$\eta_d$	Efficacité unitaire de diffusion	(-)
$\eta_{dr}$	Interaction entre l'efficacité unitaire d'interception directe et d'impaction inertielle	(-)
$\eta_i$	Efficacité unitaire d'impaction inertielle	(-)
$\eta_j$	Efficacité unitaire pour des diamètres moyens de la classe $j$	(-)
$\eta_r$	Efficacité unitaire d'interception directe	(-)
$\eta_{th}$	Efficacité unitaire théorique	(-)
$\lambda$	Libre parcours moyen de l'air	(m)
$\rho_f$	Masse volumique des fibres	(kg/m <sup>3</sup> )
$\rho_p$	Masse volumique des particules	(kg/m <sup>3</sup> )
$\rho_w$	Masse volumique de l'eau	(kg/m <sup>3</sup> )
$\mu$	Viscosité dynamique de l'air	(Pa.s)
$p/p_0$	Pression relative d'équilibre	(-)

# NOMENCLATURE

<i>DCD</i>	Die-to-Collector Distance = Distance entre la filière et le collecteur
<i>MFI</i>	Melt Flow Index = Indice de fluidité à chaud
<i>PP</i>	PolyPropylène
<i>PET</i>	PolyTéréphtalate d'Éthylène
<i>PLA</i>	Acide PolyLactique
<i>PE</i>	PolyÉthylène
<i>PA6</i>	PolyAmide 6

# INTRODUCTION GENERALE

Aujourd'hui, la qualité de l'air est un problème qui concerne l'ensemble de la population. Des périodes de pollution intense ont lieu dans le monde entier où les seuils réglementaires de concentration de polluants sont dépassés. Par exemple, Pékin commence l'année 2017 avec une concentration de particules 20 fois supérieure à la réglementation internationale (Science et avenir 2017). Tandis qu'à Paris, les seuils ont été franchis à 11 reprises en 18 jours en décembre 2016, avec une concentration de particules record de 259  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  atteint le 1<sup>er</sup> décembre 2016 (AIRPARIF 2016). Ces événements de pollution peuvent se manifester par des épisodes de « smog », brume sèche formée de particules fines et d'ozone, comme à Almaty au Kazakhstan (Figure 0-1). Cela nous rappelle combien nous sommes exposés, en permanence, aux polluants de l'air dont la nature peut être très diverse.



Figure 0-1 – Épisode de « smog » à Almaty au Kazakhstan (Wikipedia 2005)

L'article L220-2 du code de l'environnement (Code de l'environnement 2010) définit la pollution atmosphérique de la manière suivante : « constitue une pollution atmosphérique au sens du présent titre l'introduction par l'homme, directement ou indirectement ou la présence, dans l'atmosphère et les espaces clos, d'agents chimiques, biologiques ou physiques ayant des conséquences préjudiciables de nature à mettre en danger la santé humaine, à nuire aux ressources biologiques et aux écosystèmes, à influencer sur les changements climatiques, à détériorer les biens matériels, à provoquer des nuisances olfactives excessives ».

Parmi les polluants atmosphériques, certains sont plus présents que d'autres, à savoir (CITEPA 2014; AIRPARIF 2008; World Health Organisation 2006) :

- Les particules solides et liquides
- Les oxydes d'azotes (NOx)
- Les fumées noires
- Le benzène
- Le monoxyde carbone CO
- Le dioxyde de soufre SO<sub>2</sub>
- L'ozone

Pour chaque polluant, les méthodes de mesure et d'épuration sont différentes. Ici, nous nous focaliserons sur les particules solides. Elles sont regroupées en différentes classes (World Health Organisation 2006) :

- La classe **TSP** (Total Suspended Particulates) qui regroupe toutes les particules en suspension dans un volume d'air. Lorsque les particules sont solides, le terme de **poussière** est utilisé.
- La classe **PM 10** qui regroupe les particules (Particulate Matter (PM)) avec un diamètre aérodynamique équivalent inférieur à 10 µm.
- La classe **PM 2,5** qui regroupe les particules avec un diamètre aérodynamique équivalent inférieur à 2,5 µm.
- La classe **PM 1** qui regroupe les particules avec un diamètre aérodynamique équivalent inférieur à 1 µm, dites submicroniques.
- La classe **PM 0,1** qui regroupe les particules avec un diamètre aérodynamique équivalent inférieur à 100 nm, ce sont les nanoparticules.

Le terme **aérosol**, parfois utilisé, est défini comme une « suspension stable de particules liquides ou solides (généralement, de taille inférieure à 100 µm) dans l'air ».

Les particules **grossières** (> 2,5 µm) sont générées par des phénomènes mécaniques naturels (activités volcaniques, sismiques et géothermiques) ou anthropiques (activités de construction, abrasions de surface, opérations de concassage ou de travaux miniers). Elles restent en suspension dans l'air très peu de temps, quelques heures tout au plus (World Health Organisation 2006).

Les particules  **fines** (< 2,5 µm) sont générées à partir de phénomènes de nucléation et d'accumulation. Le phénomène de nucléation regroupe les réactions chimiques, les condensations de gaz ou les solidifications de liquides. Les particules générées par la nucléation ont un diamètre inférieur à 1 µm. Ces particules ultrafines peuvent ensuite s'agglomérer pour former des particules plus grosses, jusqu'à 2,5 µm, c'est le phénomène d'accumulation. Elles peuvent rester en suspension plus longtemps, jusqu'à plusieurs semaines (World Health Organisation 2006).

Les diamètres des particules selon leurs sources sont résumés dans la Figure 0-2 (World Health Organisation 2006).

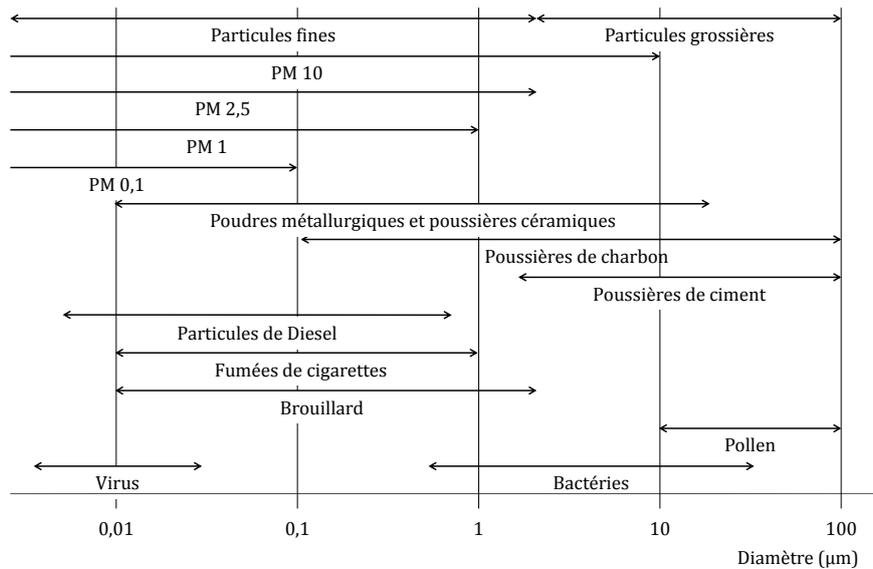


Figure 0-2 – Diamètre des particules en fonction de leur source (World Health Organisation 2006)

Un rapport de l'Organisation mondiale de la santé (World Health Organisation 2006) recense les effets des particules sur la mortalité, les problèmes cardio-vasculaires et respiratoires.

Ces études sont fondées sur un suivi de populations plus ou moins exposées à des concentrations de particules. En comparant le nombre et le type de maladie des populations les plus exposées au nombre et au type de maladie des populations les moins exposées, les scientifiques déterminent statistiquement l'impact de l'exposition aux particules. Cet impact correspond au risque relatif, s'il est positif, cela implique une augmentation des risques pour la santé sur une population tandis que s'il est négatif cela implique une diminution des risques pour la santé. La Figure 0-3 illustre la synthèse de ces études, chaque point et barre d'incertitude sont associés à un numéro qui correspond à une étude spécifique. La plupart des études présentent un risque relatif moyen positif au PM 10. Autrement dit, cela démontre que les PM 10 augmentent les risques de mortalité.

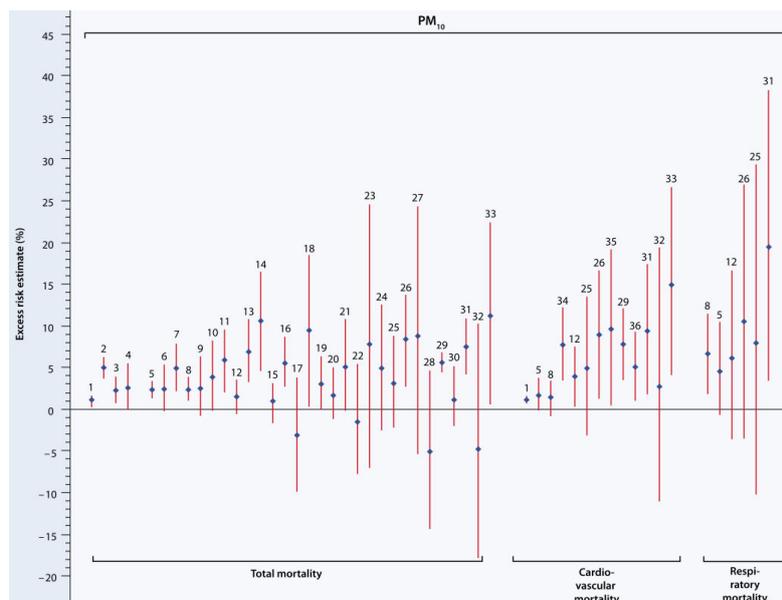


Figure 0-3 – Augmentation de mortalité liée aux PM 10 (World Health Organisation 2006)

En plus d'augmenter les risques de mortalité, les conséquences des particules sur la santé ont un impact économique. Dans un rapport du commissariat général au développement durable d'avril 2015, les coûts liés à la pollution s'évaluent entre 0,9 et 1,8 milliard d'euros par an en France, avec l'asthme qui représente 40 à 60% du coût total (Commissariat général au développement durable 2015).

Afin de se prémunir contre les particules, plusieurs stratégies existent. La première stratégie consiste à prévenir la quantité de polluants émis en modifiant les procédés pour qu'ils émettent moins de particules dans l'air. La deuxième stratégie est de se protéger des particules. Dans les deux cas, il est nécessaire de capturer les particules.

Pour capter les particules solides, de nombreux systèmes de séparation tels que les filtres industriels, les filtres automobiles ou encore les masques respiratoires s'appuient sur les médias fibreux. Ils offrent, en effet, une grande diversité de structures et de performances qui répondent à des cahiers des charges très divers en termes d'efficacité, de perte de charge, de durée de vie ou encore de coût.

Dans une démarche d'amélioration des performances et de réduction des coûts, les entreprises innent en permanence. C'est dans ce contexte qu'un consortium d'acteurs de la conception à l'utilisation des médias filtrants fibreux s'est réuni autour du projet FILAIRCO (FILage multiCOMposants pour le développement de matériaux fibreux innovants et fonctionnels : applications à la filtration de l'AIR). Ainsi, ce projet regroupe :

- Un fabricant de polymères (Arkema)
- Des fabricants de médias fibreux (Libeltex, Carpentier & Preux)
- Des entreprises qui fonctionnalisent les médias fibreux (Pylote, Robert Blondel Cosmétique)
- Un fabricant de masques respiratoires (Honeywell)
- Un fabricant de filtres industriels type manches filtrantes (Mortelecque)
- Un fabricant de filtres automobiles (Mecaplast)
- Une plate-forme technologique textile (Centre Européen des Textiles Innovants, CETI)
- Un laboratoire de recherche spécialisé en filtration de l'air (Laboratoire Réactions et Génie des Procédés, LRGP)
- Un laboratoire de recherche spécialisé en matériaux textiles (Laboratoire GENIE et Matériaux TEXTiles de l'Ecole Nationale Supérieure des Arts et Industries Textiles, GEMTEX-ENSAIT)

La Figure 0-4 rassemble les différents partenaires du projet FILAIRCO en fonction de leur place dans la chaîne de fabrication et de vente d'un filtre à médias fibreux.

Le but du projet FILAIRCO est de combiner les expertises de tous ces acteurs pour développer des médias fibreux à partir de fibres innovantes synthétiques, qui répondent aux besoins de la filtration de l'air. Pour cela, l'accent a été mis sur l'élaboration de médias fibreux avec des fibres ultrafines ou submicroniques (< 1µm) qui pourront, ensuite, être déclinés selon les cahiers des charges de chaque fabricant de filtres.

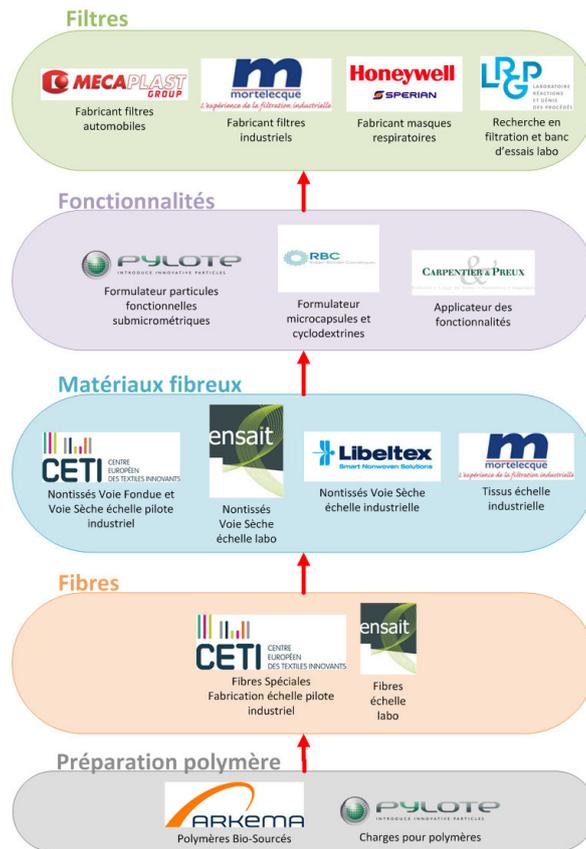


Figure 0-4 – Membres du projet FILAIRCO selon leurs spécialités

En effet, à cette échelle de taille de fibres, les interactions entre le fluide et la fibre conduisent à un gradient de vitesse non nul au contact de la fibre (« effet de glissement ») ce qui tend à diminuer la résistance à l'écoulement. Ainsi, pour une même efficacité, un média fibreux constitué de fibres ultrafines génère une perte de charge plus faible qu'un média plus conventionnel. De plus, ce type de média nécessite une masse surfacique plus faible ce qui implique une consommation plus faible de matière et donc une réduction des coûts.

Actuellement, à l'échelle d'un laboratoire ou semi-industrielle, plusieurs méthodes de fabrication de fibres ultrafines existent telles que l'électrospinning ou le drawing. Cependant, à l'échelle industrielle, peu de procédés sont disponibles, notamment en Europe.

Dans le cadre du projet FILAIRCO, l'objectif de cette thèse est axé sur le développement de médias fibreux avec des fibres ultrafines à travers l'utilisation de la technologie « nano » meltblown ainsi que de la mise en œuvre de fibres bicomposantes îles-en-mer via le procédé spunbond. Cette approche implique un triple travail, à la fois sur l'obtention de fibres ultrafines, sur leur mise en œuvre sous forme de voile et sur l'homogénéité des médias fibreux produits. En effet, pour chacune des technologies citées, l'élaboration d'un média fibreux induit une certaine hétérogénéité. L'origine de cette hétérogénéité est multiple : distribution des diamètres des filaments, variation locale de l'épaisseur, de compacité ou de la masse surfacique des fibres. Ce qui nous a conduits à mener, en parallèle des travaux d'élaboration de médias et maîtrise des procédés, une étude et une modélisation des performances de filtration afin de mieux comprendre l'impact des fibres ultrafines et de l'hétérogénéité des médias fibreux en filtration de l'air.

La majorité des modèles de filtration (perméabilité et efficacité) considère, en effet, un média fibreux idéal avec des fibres monodisperses et une répartition de matière homogène au sein du média fibreux.

En réalité, ces conditions sont rarement réunies. Ainsi comprendre l'influence des différentes hétérogénéités sur les performances de filtration peut s'avérer un enjeu important pour améliorer les performances des médias filtrants.

Ce manuscrit est divisé en 4 chapitres :

Le chapitre 1 dresse un état de l'art sur les médias fibreux composés de fibres ultrafines en filtration de l'air. Tout d'abord, nous énoncerons des généralités sur les médias fibreux dédiés à la filtration de l'air. Puis, nous détaillerons la théorie de la filtration appliquée aux médias fibreux mettant en évidence l'intérêt théorique des fibres ultrafines. Enfin, nous présenterons et comparerons les différentes méthodes actuelles de fabrication des fibres ultrafines.

Le chapitre 2 regroupe les études et le développement de médias à fibres ultrafines en polypropylène obtenus à partir du procédé « nano » meltblown. Tout d'abord, nous rappellerons les caractéristiques des matériaux et des technologies utilisées ainsi que les caractérisations réalisées. Ensuite, nous expliquerons la démarche suivie pour l'étude du procédé « nano » meltblown afin d'améliorer notre compréhension de cette technologie. Puis, nous analyserons l'influence des principaux paramètres du procédé « nano » meltblown sur la structure du média fibreux en vue de mieux contrôler la structure finale. Nous avons notamment étudié l'influence de la viscosité à chaud des polymères sur la structure des médias fibreux en utilisant trois polypropylènes de viscosité à chaud différente.

Le chapitre 3 présente l'étude et le développement de médias à fibres ultrafines obtenus à partir du procédé spunbond bicomposant îles-en-mer avec extraction des îles par hydrofracturation. Nous commencerons par présenter les caractéristiques des matériaux et des procédés utilisés ainsi que les caractérisations réalisées. Ensuite, nous expliquerons la démarche de l'étude afin de mieux maîtriser le procédé spunbond bicomposant îles-en-mer et l'hydrofracturation de ces médias fibreux. Puis, nous analyserons l'influence des paramètres procédés tels que le ratio île/mer et la pression des jets d'eau sur la structure du média fibreux. Enfin, nous développerons une structure de média spunbond bicomposant îles-en-mer PP/PLA avec dégradation du PLA afin d'augmenter l'hydrofracturation tout en réduisant la pression des jets d'eau.

Le chapitre 4 présente la caractérisation et la modélisation des médias à fibres ultrafines « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. L'approche de la modélisation que nous proposons s'intéressera particulièrement à la prise en compte de l'hétérogénéité en utilisant un facteur de correction. Tout d'abord, nous détaillerons le banc de filtration utilisé ainsi que les conditions des essais. Puis, nous exposerons les performances brutes obtenues avec les médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Ensuite, nous appliquerons les modèles de perméabilité de la littérature à nos médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Enfin, nous comparerons les modèles d'efficacité de la littérature à nos médias avec et sans prise en compte de l'hétérogénéité.

# Chapitre 1: ETAT DE L'ART DES MEDIAS FIBREUX A FIBRES SUBMICRONIQUES EN FILTRATION DE L'AIR

L'objectif de ce chapitre est de présenter l'intérêt de l'utilisation de médias fibreux à fibres ultrafines et les différentes méthodes de fabrication de fibres ultrafines. Dans un premier temps, nous exposerons le contexte économique et les caractéristiques des médias fibreux. Dans un second temps, nous détaillerons les mécanismes de filtration ainsi que les modèles associés afin de montrer l'intérêt des fibres ultrafines. Dans un troisième temps, nous expliquerons et comparerons les différentes méthodes de fabrication des fibres ultrafines.

## 1.1 GENERALITE SUR LES MEDIAS FIBREUX

Le terme de média fibreux regroupe tous les médias à base de fibres c'est-à-dire les médias tissés, tricotés et nontissés. La grande majorité des médias adaptés à la filtration sont les médias fibreux nontissés. Ainsi, nous présenterons uniquement les médias fibreux nontissés dans cette partie et nous assimilerons le terme de médias fibreux à médias fibreux nontissés.

### 1.1.1 DEFINITION D'UN MEDIA FIBREUX NONTISSE

Il existe différentes définitions de nontissés (Chapman 2010). Par exemple, EDANA (European Disposables and Nonwovens Association), association européenne, définit les nontissés comme : « Une feuille manufacturée, voile ou nappe orientée directionnellement ou au hasard, liées par friction et/ou cohésion et/ou adhésion, en excluant le papier et les produits qui sont tissés, tricotés, tuftés et cousus en incorporant les fils et des filaments de liage, ou feutrés par foulardage humide, aiguilleté ou non. Les fibres peuvent être d'origine naturelle ou synthétique. Elles peuvent être sous forme de fibres, filaments continus ou être formées in situ. » (EDANA 2016b).

La norme ISO 9092:2011 définit, quant à elle, un nontissé comme une « structure constituée de matières textiles, comme des fibres, des filaments continus ou des fils coupés, quelle qu'en soit la nature ou l'origine, formée en voile par un moyen quelconque, et liée par tout moyen, excluant l'entrelacement de fils comme dans une étoffe »

Ces différentes définitions suggèrent que les médias fibreux nontissés se différencient des structures textiles « classiques » (tissage, tricotage ...) par leur mode de fabrication. Au lieu d'utiliser les fibres pour former un fil puis une structure textile, les médias fibreux nontissés sont créés directement à partir de fibres. Les fibres forment un voile qui est ensuite consolidé. Ce processus est plus court que les procédés textiles « classiques », ce qui permet une productivité plus importante et des coûts plus faibles.

### 1.1.2 QUELQUES CHIFFRES

Depuis les années soixante, la production de nontissés mondiale croît de manière constante (Wilson 2006). La Figure 1-1 représente l'évolution de la production de nontissés en 2001, 2006 et 2011 en Europe, en Asie, en Amérique du Nord et dans le reste du monde (Prigneaux 2012). Elle montre une augmentation de la production mondiale entre 2001 et 2011. En 2001, la production est répartie entre l'Europe, l'Asie et l'Amérique du Nord (NAFTA) tandis qu'en 2011 la production de nontissés en Asie atteint la moitié de la production mondiale. Cela montre une croissance plus importante en Asie que dans les autres parties du monde.

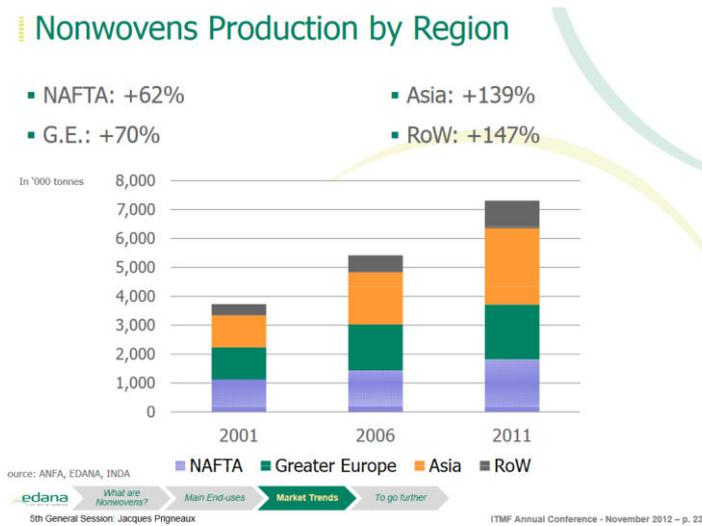


Figure 1-1 – Production de nontissés en Europe, en Asie, en Amérique du Nord et dans le reste du monde en 2001, 2006 et 2011 (Prigneaux 2012)

En Europe, la production de nontissés croît de manière régulière et atteint 2167 milliers de tonnes de nontissés en 2014 comme le montre la Figure 1-2 qui représente l'évolution de la production de nontissés de 2000 à 2014.

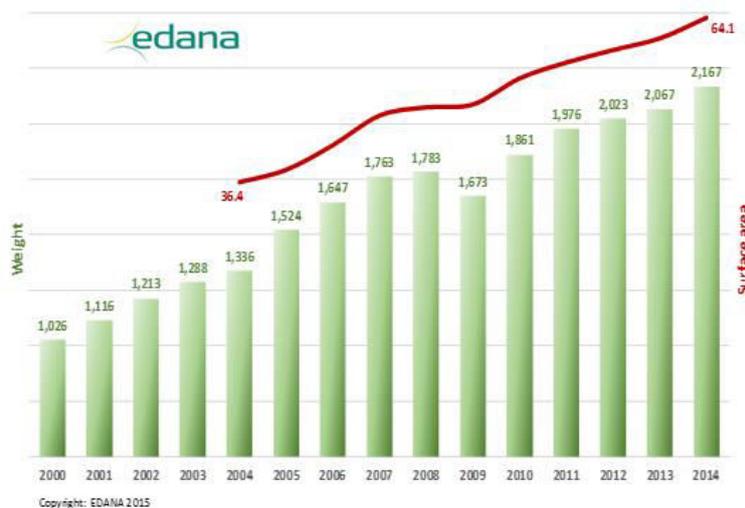


Figure 1-2 – Production de nontissés en Europe de 2000 à 2014 en milliers de tonnes (EDANA 2016a)

Tous ces indicateurs témoignent de l'utilisation de plus en plus importante des médias fibreux nontissés. En effet, ils sont présents dans un nombre important de secteurs d'activités tels que l'hygiène, la filtration ou le géotextile (Figure 1-3). Le secteur de la filtration de l'air représente 2,4% de la production en masse totale, soit 49,4 milliers de tonnes en 2014 pour l'Europe. La filtration reste donc un secteur demandeur et consommateur de médias fibreux nontissés.

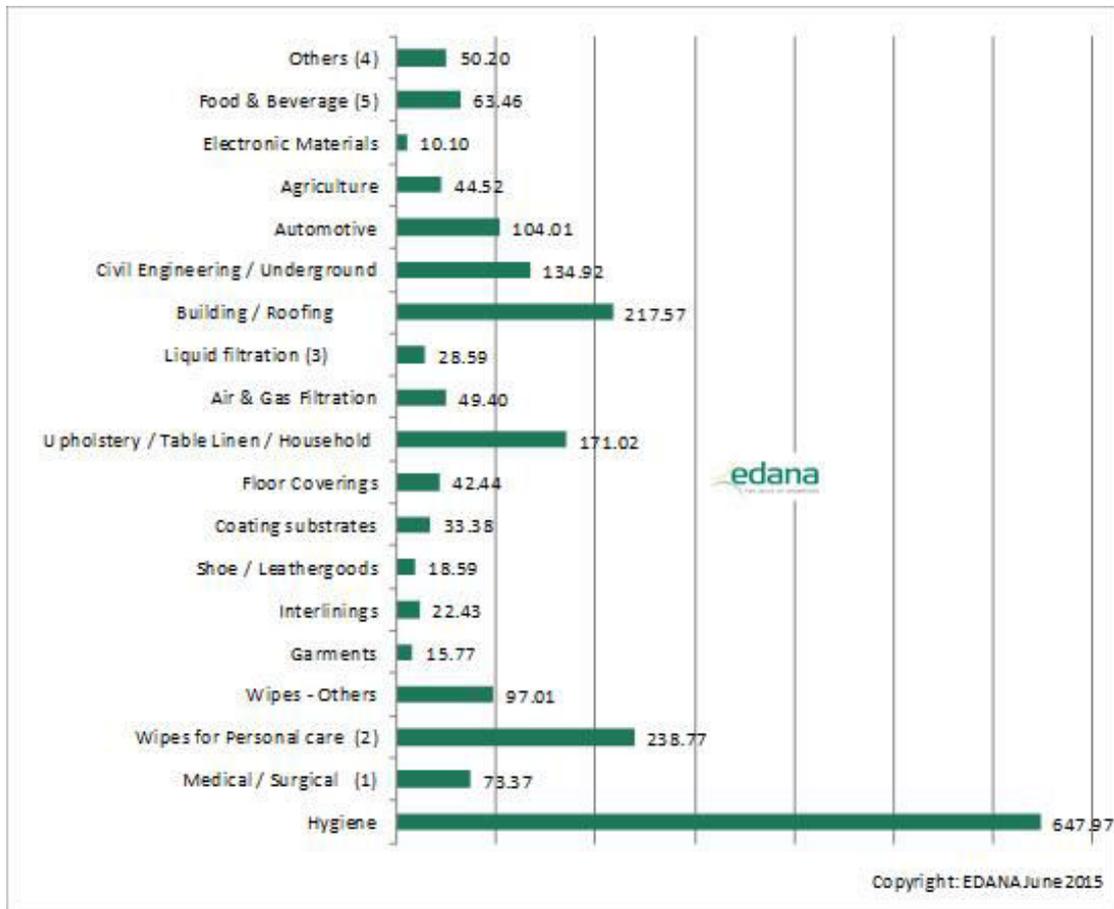


Figure 1-3 – Production de 2000 à 2014 de nontissés en millier de tonnes en Europe répartie en 19 secteurs d'activités (EDANA 2016a)

### 1.1.3 TECHNIQUES DE FABRICATION DES NONTISSES

Schématiquement, la fabrication d'un nontissé se fait en plusieurs étapes : la sélection des fibres, la formation d'un voile à partir des fibres sélectionnées et la consolidation du voile formé. La Figure 1-4 répertorie les différents procédés de fabrication d'un média fibreux nontissé.

Elle montre qu'à chaque étape, plusieurs natures de fibres, de procédés ou de consolidations sont possibles. Ainsi, pour chaque combinaison de fibres, de procédés et de consolidations, le média fibreux final est unique.

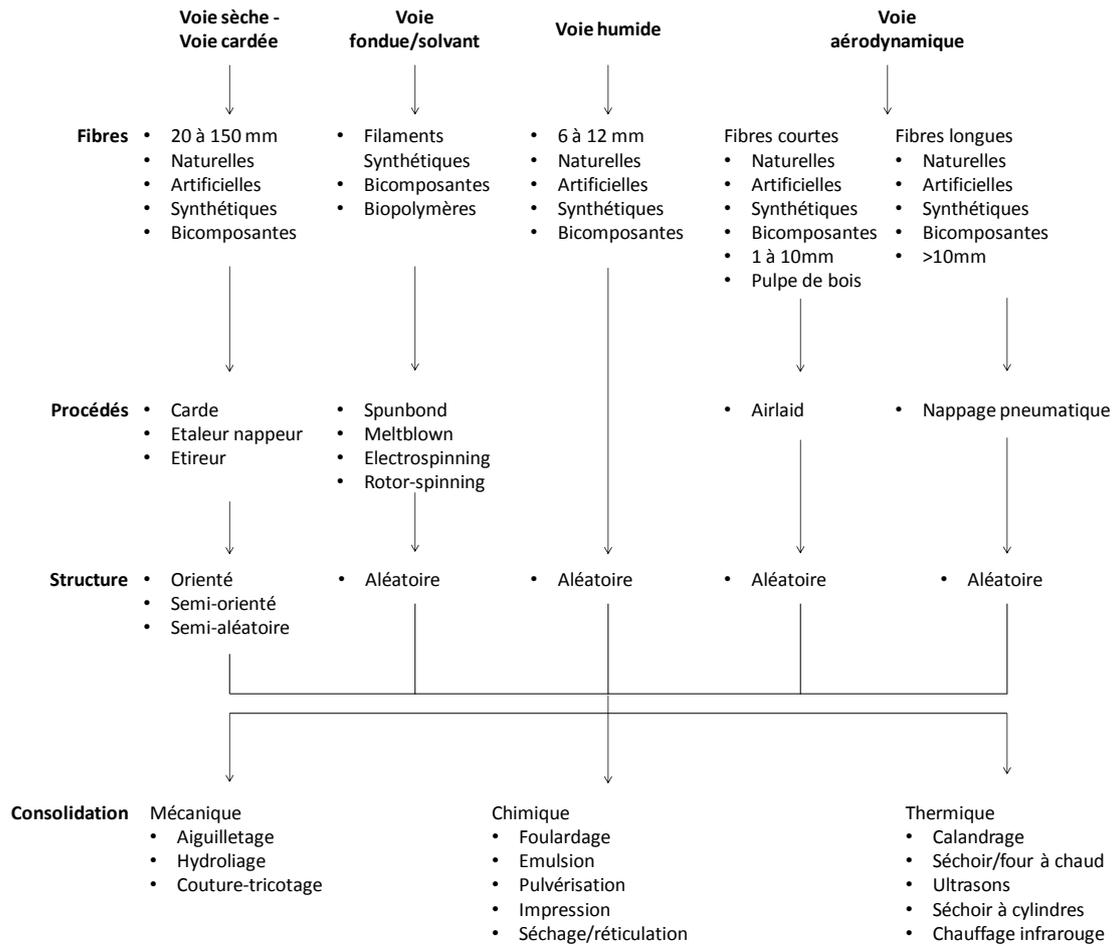


Figure 1-4 – Vue d'ensemble des techniques de fabrication des nontissés (Payen et al. 2009; Wilson 2006)

Les différentes méthodes de fabrication d'un média fibreux peuvent être classées en 4 voies (Payen et al. 2009; Wilson 2006) :

- La **voie sèche** (Drylaid) regroupe les médias fibreux nontissés créés à partir d'une carde, c'est-à-dire un procédé permettant d'aligner les fibres.
- La **voie humide** (Wetlaid) consiste à utiliser des fibres en suspension dans l'eau pour ensuite générer un voile en diluant la solution et en essorant le voile nouvellement créé.
- La **voie fondue** (Spunlaid/Spunmelt) et **solvant** font référence aux procédés qui utilisent des granules de polymères ou des solutions de polymères pour former des filaments puis des voiles en une seule étape comme les procédés spunbond ou d'électrospinning.
- La **voie aérodynamique** (Airlaid) regroupe les procédés qui projettent des fibres directement sur un tapis pour générer un média fibreux.

La consolidation des voiles formées peut être mécanique, chimique ou thermique.

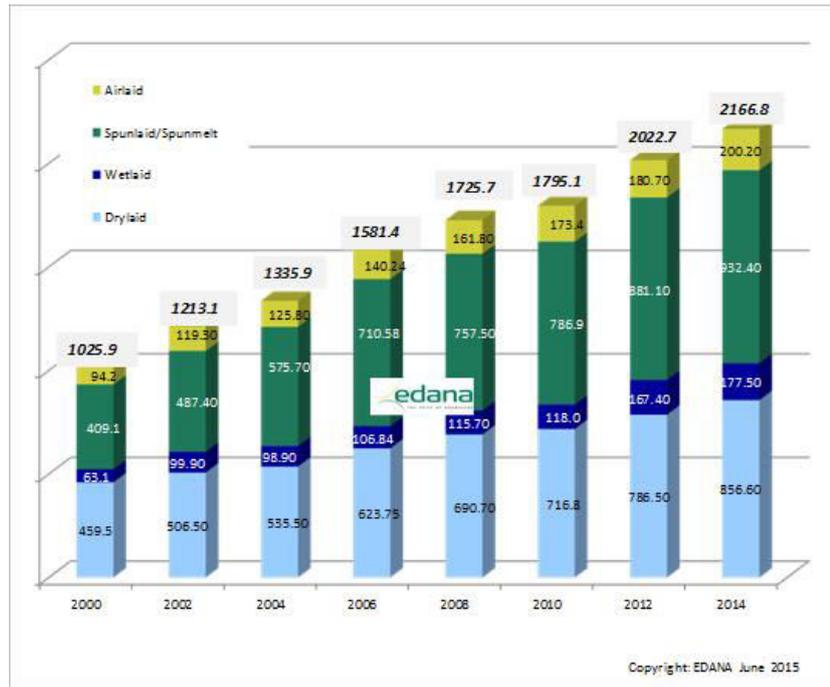


Figure 1-5 – Production 2014 en Europe de nontissés par voie de fabrication en milliers de tonnes (EDANA 2016a)

La répartition de production selon les différentes voies entre 2000 et 2014 est résumée dans la Figure 1-5. En 2000, la production se divise principalement entre la voie sèche (dry laid) et la voie fondue (spunlaid/spunmelt) tandis qu'en 2014, la production de la voie fondue est plus importante que la production de la voie sèche. La croissance plus importante de la voie fondue peut s'expliquer par les capacités de production plus importantes de la voie fondue par rapport à la voie sèche. Par exemple, les procédés en voie fondue peuvent atteindre des vitesses de 1000 m/min alors que les cartes hautes vitesses atteignent des vitesses maximales de 400 m/min (The Nonwoven Institute 2010).

En raison de la diversité des procédés nontissés, une large gamme de produits peut être obtenue. Il est possible d'obtenir des médias fibreux avec des diamètres moyens de fibres entre 0,5 et 500  $\mu\text{m}$ , des épaisseurs entre 20 à 500  $\mu\text{m}$  ou encore atteindre des masses surfaciques de 3 à 2000  $\text{g}/\text{m}^2$ . Les médias fibreux peuvent alors avoir de nombreuses propriétés intéressantes : mécaniques (compressibilité, résistance...), physiques (thermique, acoustique...), d'écoulement et d'absorption (perméabilité à l'air, absorption de liquide...) et chimiques (déperlance, résistant au feu, oléophobe...)(Mao et al. 2006; Hutten 2015).

## 1.1.4 GRANDEURS CARACTERISTIQUES D'UN MEDIA FIBREUX

### 1.1.4.1 Masse surfacique

La masse surfacique  $M_s$  représente la masse des fibres pour une unité de surface. La méthode la plus simple pour mesurer la masse surfacique est de peser une surface connue d'un échantillon. Dans le cas de médias fibreux, elle s'exprime en gramme par mètre carré ( $\text{g}/\text{m}^2$ ).

### 1.1.4.2 Épaisseur

L'épaisseur  $Z$  représente la distance entre la face supérieure et la face inférieure d'un média fibreux. Cette distance est difficile à déterminer dans les cas des médias fibreux, car ils sont plus ou moins compressibles.

Le plus souvent, la mesure s'effectue selon la norme ISO 9073-15:2007. Elle propose de placer l'échantillon entre une plaque de métal et un pied presseur puis de mesurer l'écart entre la plaque et le pied presseur. Cet écart correspond alors à l'épaisseur. La norme précise la surface minimum du pied presseur de  $2500 \text{ mm}^2$ , un temps de contact de 10 secondes, une pression de 0,1 kPa ou de 0,5 kPa selon la compressibilité de l'échantillon. Ce protocole est simple et rapide à mettre en œuvre, mais il présente l'inconvénient de compresser l'échantillon avec le pied presseur.

Pour mesurer l'épaisseur sans compresser l'échantillon, d'autres méthodes ont été testées. Tout d'abord, il y a le test de Washburn (Frising 2004) qui s'appuie sur la corrélation entre la vitesse d'imbibition d'un liquide par le média fibreux et l'épaisseur. Cette méthode nécessite cependant un dispositif adapté à la mesure de l'imbibition ainsi qu'un solvant qui mouille parfaitement le média fibreux.

Une autre méthode consiste à mesurer l'épaisseur à l'aide d'un microscope. Cette méthode permet de mesurer l'épaisseur d'un média fibreux sans compression. Cependant, elle nécessite un nombre important de précautions à savoir un alignement précis entre l'échantillon et le microscope, une coupe nette de l'échantillon ainsi qu'un grand nombre de mesures.

La comparaison de ces 3 méthodes montre des résultats relativement proches (Thomas 2001).

### 1.1.4.3 Compacité

La compacité  $\alpha$ , ou la fraction volumique, d'un média fibreux représentent le volume de fibres  $V_{fibres}$  par rapport au volume total  $V_{total}$  du média fibreux. À partir de l'épaisseur  $Z$ , de la masse surfacique  $M_s$  et de la masse volumique des fibres  $\rho_f$ , elle peut être calculée selon l'équation (1-1).

$$\alpha = \frac{V_{fibres}}{V_{total}} = \frac{M_s}{Z\rho_f} \quad (1-1)$$

Elle peut aussi être exprimée en fonction de la porosité  $\epsilon$ , fraction de vide d'un média fibreux ou volume des pores  $V_{pores}$ , comme dans l'équation (1-2).

$$\epsilon = \frac{V_{pores}}{V_{total}} = 1 - \alpha \quad (1-2)$$

#### 1.1.4.4 Diamètre moyen des fibres

Un média nontissé possède la particularité de posséder différentes tailles de fibres ainsi le terme diamètre de fibres est ambigu, car il correspond à la fois au diamètre d'une fibre particulière et à un diamètre représentatif de l'ensemble des fibres d'un média fibreux.

Pour nous, le terme diamètre de fibres correspondra au diamètre d'une fibre particulière tandis que le terme diamètre moyen des fibres  $d_f$  correspondra à un diamètre représentatif de l'ensemble des fibres d'un média fibreux.

En première approche, le diamètre moyen des fibres est souvent assimilé au diamètre d'une section de fibres. Cette approche sous-entend que la fibre est cylindrique et que la section est constante d'une fibre à l'autre. Or, ces deux conditions sont rarement réunies. Il faut donc distinguer plusieurs cas.

##### La fibre est cylindrique et la section est constante d'une fibre à l'autre

C'est le cas le plus simple, le diamètre de la fibre correspond à la fois au diamètre de la section de la fibre et au diamètre moyen des fibres calculé à partir de l'ensemble des fibres. C'est un cas uniquement théorique, car chaque média fibreux réel est composé de fibres de sections différentes, bien que la différence soit parfois faible.

##### La fibre est cylindrique et la section n'est pas constante d'une fibre à l'autre

Dans ce cas, il est nécessaire de mesurer un nombre important de sections de fibres afin d'obtenir une distribution des diamètres de fibres. À partir de cette distribution, un diamètre moyen des filaments peut être défini. En effet, selon le type de distribution, le diamètre moyen des filaments peut alors être la moyenne arithmétique, la moyenne géométrique ou encore la médiane de la distribution des diamètres de fibres mesurés. Généralement, les médias fibreux appartiennent à ce cas et le diamètre moyen correspond à la moyenne arithmétique de la distribution. Parfois, lorsque la distribution est irrégulière comme dans le cas des médias fibreux meltblown, la médiane peut être utilisée comme diamètre moyen de fibres.

Le diamètre moyen des fibres est qualifié de monodisperse lorsque la distribution est peu étalée (écart type logarithmique inférieur à 1,2) et est qualifié de polydisperse lorsque la distribution est large (écart type logarithmique supérieur à 1,2).

##### La fibre n'est pas cylindrique

Dans cette situation, il est impossible de mesurer une section et de réaliser une distribution comme précédemment. Il faut alors s'appuyer sur des caractéristiques physiques du média fibreux afin de calculer un diamètre équivalent. Par exemple, il est possible de calculer un diamètre aérodynamique équivalent à partir de mesure de perméabilité. Le diamètre aérodynamique équivalent correspond alors au diamètre des fibres cylindriques d'un média fibreux avec la même perméabilité.

De manière générale, lorsque les fibres sont cylindriques, les diamètres de fibres sont mesurés à l'aide d'un microscope optique pour les fibres supérieures à 10  $\mu\text{m}$ , et à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) pour les diamètres inférieurs à 10  $\mu\text{m}$ .

Pour faciliter les échanges commerciaux, le diamètre moyen des filaments est remplacé par d'autres grandeurs telles que le tex ou le titre qui représentent la masse pour une longueur de filament de 1 km. Si les fibres sont fines, le terme dtex est utilisé. Par exemple, avec du polypropylène, des filaments de 10 µm correspondent à un titre de 0,70 dtex ou 0,07 tex.

#### 1.1.4.5 Longueur spécifique de fibre

La longueur spécifique ou longueur de fibres unitaires correspond à la somme des longueurs de chacune des fibres comprises dans une surface unité. Elle peut se calculer à partir de l'épaisseur  $Z$ , du diamètre moyen des filaments  $d_f$  et la compacité  $\alpha$  selon l'équation (1-3). Elle s'exprime en mètre par mètre carré ( $m/m^2$ ) ou en kilomètre par mètre carré ( $km/m^2$ ).

$$L_{th} = \frac{4\alpha Z}{\pi d_f^2} \quad (1-3)$$

#### 1.1.4.6 Surface spécifique des fibres

La surface spécifique  $a_f$  exprime la superficie réelle d'un média fibreux par unité de masse ou de volume. Dans le cas d'un média fibreux avec des fibres cylindriques, elle est exprimée théoriquement selon l'équation (1-4) suivante :

$$a_f = \frac{S_{fibres}}{V_{fibres}} = \frac{4}{\rho_f d_f} \quad (1-4)$$

Avec :

$a_f$  : Surface spécifique ( $m^2/g$ )

$\rho_f$  : Masse volumique de la fibre ( $g/m^3$ )

$S_{fibres}$  : Surface des fibres ( $m^2$ )

$V_{fibres}$  : Volume des fibres ( $m^3$ )

$d_f$  : Diamètre des fibres (m)

#### 1.1.4.7 Orientation des fibres

L'orientation des fibres représente l'alignement des fibres les unes par rapport aux autres au sein d'un média fibreux. Selon les procédés utilisés pour le fabriquer, les fibres sont alignées de manière plus ou moins aléatoires. L'orientation des fibres est notamment importante pour les propriétés mécaniques du média. En effet, une orientation aléatoire des fibres impliquera des propriétés isotropes tandis qu'une orientation privilégiée des fibres impliquera des propriétés anisotropes.

#### 1.1.4.8 Uniformité de répartition des fibres

Au niveau macroscopique, la répartition des fibres au sein d'un média semble uniforme. Toutefois, localement, l'épaisseur, la compacité et la masse surfacique ne sont pas constantes. Selon les procédés et les conditions de mise en œuvre, ces hétérogénéités locales peuvent être importantes et influencer les propriétés finales du média.

#### 1.1.4.9 Nature des fibres et mélanges

La nature chimique des fibres et les mélanges de fibres sont des paramètres importants. En effet, ils sont au cœur des propriétés physico-chimiques (hydrophobie, absorption des liquides...) ou des propriétés mécaniques (résistance en traction...) des médias fibreux.

De plus, des fibres techniques de haute qualité constituent une matière première chère. Les mélanger à des fibres moins chères permet de fabriquer un voile avec des propriétés intéressantes à un coût plus faible.

#### 1.1.4.10 Morphologie des fibres

La morphologie des fibres regroupe les caractéristiques des fibres telles que la longueur des fibres, la forme des sections ou encore la frisure. Toutes ces caractéristiques influencent les propriétés finales du média. Par exemple, une fibre avec une section en forme d'« étoile » comme à la Figure 1-6 qui possède une surface élevée par rapport à une fibre cylindrique. Ce type de fibre permet d'accroître l'efficacité, néanmoins la perte de charge augmente significativement (Skomra 2011).

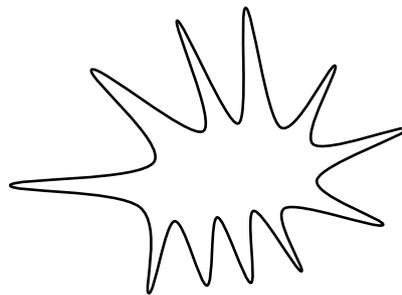


Figure 1-6 – Section d'une fibre avec une surface élevée

#### 1.1.4.11 Structures complexes

Un produit fini à base de médias fibreux est rarement composé d'un seul média fibreux. Le plus souvent, plusieurs couches de médias fibreux d'un ou de plusieurs types sont associées afin de répondre à un cahier des charges. L'association de deux médias fibreux peut être faite par hydroliage ou aiguilletage (Brunnschweiler et al. 2006). Mais, elle peut être aussi réalisée en une seule étape en combinant plusieurs procédés sur une même ligne. Un exemple connu est l'alignement de procédé spunbond et meltblown pour former des multicouches spunbond-meltblown-spunbond (SMS).

### 1.1.5 EXEMPLE D'APPLICATIONS DES MEDIAS FIBREUX EN FILTRATION DE L'AIR

Comme mentionné en introduction, les médias fibreux sont très fréquemment utilisés pour la filtration de l'air ou l'épuration des fumées. A titre d'illustration, nous détaillerons trois utilisations liées au projet FILAIRCO: les dépoussiéreurs industriels à manches filtrantes, les filtres air moteur et les masques respiratoires.

### 1.1.5.1 Filtres industriels

Les installations industrielles telles que les centrales thermiques, les usines chimiques, les cimenteries ou les fonderies utilisent les filtres industriels à manches filtrantes pour minimiser l'émission de polluants. Les manches filtrantes sont composées d'un média fibreux dans lequel s'insère un support métallique qui maintient la forme de la manche (Figure 1-7).



Figure 1-7 – Manche filtrante (Mortelecque 2016)

Le principe de fonctionnement des dépoussiéreurs à manches filtrantes est simple. Le gaz contenant les particules traverse les manches filtrantes. Lors de ce passage, les particules sont collectées et s'accumulent à la surface extérieure de la manche filtrante pour former un gâteau de particules (colmatage). Le gâteau de particules augmente alors la perte de charge. Pour limiter la perte de charge, un système décolmate les manches filtrantes lorsque la perte de charge atteint une valeur critique. Le plus souvent, le décolmatage s'effectue par à-coups d'air comprimé à contre-courant afin de briser le gâteau qui tombe sous forme d'agrégats dans une trémie de collecte.

Ce système permet de traiter des débits importants de poussières de manière très efficace, mais nécessite des investissements de départ importants.

### 1.1.5.2 Filtres air moteur

Le fonctionnement d'un moteur thermique nécessite un air propre sous peine d'augmenter l'usure du moteur et la consommation du moteur. Pour cela, l'air fourni au moteur circule à travers un filtre plissé afin de capter un maximum de poussière comme à la Figure 1-8. Plisser le filtre permet d'augmenter la surface de filtration tout en minimisant l'encombrement du filtre. Par exemple, le filtre à air moteur de la Figure 1-8 possède une surface de filtration de  $2 \text{ m}^2$  dans un volume de  $3 \text{ dm}^3$ . Au fur et à mesure de la filtration, le filtre se colmate et la perte de charge augmente. Ainsi, la durée de vie correspond à la durée de filtration avant que le filtre atteigne une perte de charge critique.



Figure 1-8 – Filtre air moteur (Wikipedia 2016)

Chaque constructeur de voiture fixe son propre cahier des charges, cependant les méthodes de mesure et d'évaluation des filtres sont normées. La norme ISO 5011 définit, par exemple, les poussières à utiliser et les méthodes de mesure de la perte de charge, de l'efficacité et du colmatage.

### 1.1.5.3 Masques respiratoires à usage unique

Les masques respiratoires à usage unique permettent une protection à l'échelle individuelle pour de courtes durées. L'exemple le plus connu est le demi-masque respiratoire de type FFP (Filtering Facepiece Particules), utilisé contre les poussières et mis en avant lors des épisodes épidémiques d'H<sub>1</sub>N<sub>1</sub> (Figure 1-9).



Figure 1-9 – Photo d'un demi-masque respiratoire FFP2

Le masque est composé d'une ou plusieurs couches meltblown qui sont protégées par des couches spunbond. Pour améliorer l'efficacité du masque sans augmenter la perte de charge, les couches meltblown sont chargées électrostatiquement. Pour cela, on peut ajouter des poudres électrostatiques, traiter les couches meltblown par décharge Corona ou même utiliser des fibres triboélectriques qui se chargent par frottement. Ces différentes méthodes fonctionnent à court terme, mais la durée de la charge décline dans le temps. D'autres alternatives émergent comme l'utilisation de fibres ultrafines.

La norme EN 149:2009 définit 3 niveaux de protection concernant les masques FFP :

- Le masque FFP1 : Il est adapté à la protection vis-à-vis des particules grossières sans toxicité particulière et des brouillards à base d'eau ou d'huile. Ils sont souvent utilisés dans le cas de bricolage de travaux divers.
- Le masque FFP2 : Ce masque est notamment utilisé pour la protection des poussières issue de productions industrielles telles qu'en verrerie, en fonderie, en construction, en agriculture ou encore en pharmacie. Il peut aussi servir de protection contre les virus de la grippe, le SRAS ou encore la tuberculose.
- Le masque FFP3 : C'est le plus efficace des masques FFP, il est adapté à la protection contre les particules fines comme la céramique.

Le Tableau 1-1 définit les principales spécifications d'efficacité et de perte de charge pour les masques respiratoires FFP après une période de conditionnement.

Tableau 1-1 - Exigences de la norme EN149:2009

Classes	Efficacité minimum avec NaCl ou huile de paraffine (%) $d_p = 0,6 \mu\text{m}$	Résistance maximale (mbar)		
		30L/min inspiration	95L/min inspiration	160L/min expiration
FFP1	80	0,6	2,1	3
FFP2	94	0,7	2,4	3
FFP3	99	1	3	3

## 1.2 THEORIE DE LA FILTRATION DE L'AIR PAR DES MEDIAS FIBREUX

Dans cette partie, nous décrirons, dans un premier temps, les mécanismes et les modèles d'écoulement de l'air (perte de charge) et de capture des particules (efficacité). Dans un deuxième temps, nous montrerons l'intérêt théorique de l'utilisation des fibres ultrafines.

### 1.2.1 PERTE DE CHARGE D'UN MEDIA FIBREUX

#### 1.2.1.1 Définition de la perte de charge

L'écoulement de l'air à travers un média fibreux crée une résistance à l'écoulement, cela se traduit par la création d'une différence de pression entre l'amont et l'aval du média fibreux, c'est la **perte de charge**  $\Delta P$  (Tarleton & Wakeman 2008). En mesurant la pression amont  $P_{amont}$  et la pression aval  $P_{aval}$ , la perte de charge est obtenue selon l'équation (1-5) suivante :

$$\Delta P = P_{amont} - P_{aval} \quad (1-5)$$

#### 1.2.1.2 Écoulement dans un média fibreux

Un média fibreux est formé par un ensemble de fibres, souvent réparti de manière aléatoire. Cet arrangement forme des pores, irréguliers, par lesquels l'air s'écoule, qui complexifie la description mathématique de l'écoulement de l'air. La résolution des équations de Navier-Stokes devient alors longue et difficile. Néanmoins, à l'échelle macroscopique, un média fibreux peut être assimilé à un milieu poreux où une phase solide (les fibres) est incluse dans un fluide (l'air). Ainsi, la loi de Darcy (Darcy 1856) (l'équation (1-6)) s'applique aux médias fibreux pour un écoulement laminaire. Elle relie la vitesse de l'écoulement à travers un milieu poreux, supposé isotrope et homogène, et un gradient de pression.

$$\Delta P = \mu R_{écoulement} V_f = \mu \frac{Z}{k} V_f \quad (1-6)$$

Avec :

$\Delta P$  : Perte de charge (Pa)

$\mu$  : Viscosité dynamique de l'air (Pa.s)

$R_{écoulement}$  : Résistance à l'écoulement (1/m)

$V_f$  : Vitesse du fluide en fût vide (m/s)

$Z$  : Epaisseur (m)

$k$  : Perméabilité (m<sup>2</sup>)

La vitesse du fluide en fût vide ou superficielle  $V_f$  correspond au rapport entre le débit volumique et la section du filtre. Elle est à différencier de la vitesse interstitielle  $V_i$  qui correspond à la vitesse du fluide à l'intérieur de pores. Les deux valeurs sont reliées selon l'équation (1-7).

$$V_f = \epsilon V_i \quad (1-7)$$

Dans la littérature, il existe d'autres relations qui décrivent l'écoulement dans un milieu poreux comme la relation de Kozeny-Carman (Kozeny 1927; Carman 1956) ou encore la loi de Forchheimer (Forchheimer 1901). Cependant, elles nécessitent des coefficients expérimentaux et sont applicables pour des porosités inférieures à 0,7.

En considérant la loi de Darcy comme loi d'écoulement pour les médias fibreux, la modélisation de l'écoulement revient à modéliser la perméabilité  $k$  du média fibreux. Ce paramètre est fortement lié à la géométrie du média fibreux et par conséquent, à la compacité et aux diamètres des fibres. Ainsi, la perméabilité  $k$  est reliée au rayon des fibres  $r$  et à un paramètre adimensionnel  $f(\alpha)$  (Jackson & James 1986; Thomas 2001), fonction de la compacité du média fibreux, selon l'équation (1-8).

$$k = r^2 f(\alpha) \quad (1-8)$$

Le Tableau 1-2 regroupe les principales expressions de  $f(\alpha)$  dans la littérature (Langmuir 1942; Happel 1959; Kuwabara 1959; Drummond & Tahir 1984; Davies 1973; Henry & Ariman 1983; Jackson & James 1986).

Tableau 1-2 - Expression de  $f(\alpha)$  dans la littérature (Thomas 2001)

Auteurs	Expressions $f(\alpha)$	Arrangements	Commentaires
Langmuir (1942) et Happel (1959)	$\frac{1}{4\alpha} \left( -\ln \alpha - \frac{3}{2} + 2\alpha - \frac{\alpha^2}{2} \right)$	Écoulement parallèle aux fibres	
Happel (1959)	$\frac{1}{8\alpha} \left( -\ln \alpha + \frac{\alpha^2 - 1}{\alpha^2 + 1} \right)$		
Kuwubara (1959)	$\frac{1}{8\alpha} \left( -\ln \alpha - \frac{3}{2} + 2\alpha \right)$	Écoulement perpendiculaire aux fibres	
Drummond et Tahir (1984)	$\frac{1}{8\alpha} \left( -\ln \alpha - 1,476 + 2\alpha - 1,774\alpha^2 \right)$		Arrangement des fibres en carré
Davies (1973)	$\frac{1}{16\alpha^{\frac{3}{2}}(1 + 56\alpha^3)}$		$0,006 < \alpha < 0,3$
Henry et Ariman (1983)	$\frac{1}{2,444\alpha + 38,16\alpha^2 + 138,9\alpha^3}$	Écoulement à travers un arrangement aléatoire de fibres	
Jackson et James (1986)	$\frac{3}{20\alpha} \left( -\ln \alpha - 0,931 \right)$		$\alpha < 0,25$

### 1.2.1.3 Facteur de Knudsen

Pour décrire l'écoulement d'un fluide dans un média fibreux, le fluide est supposé continu. Or, des effets non continus apparaissent lorsque les interactions intra moléculaires du fluide deviennent non négligeables en comparaison des interactions entre les molécules du fluide et les fibres. Le nombre adimensionnel de Knudsen quantifie le rapport entre ces interactions. Il correspond au rapport entre le libre parcours moyen des molécules du fluide et une longueur caractéristique du milieu qu'il traverse. Dans le cas de l'écoulement de l'air à travers un média fibreux, le nombre de Knudsen relatif aux fibres  $Kn_f$  s'exprime comme dans l'équation (1-9). À pression atmosphérique (101,3 kPa) et à 23°C (296 K), le libre parcours moyen de l'air est évalué à 67,3 nm (Allen & Raabe 1982).

$$Kn_f = \frac{2\lambda}{d_f} \quad (1-9)$$

Avec :

$\lambda$  : Libre parcours moyen de l'air (m)

$d_f$  : Diamètre des filaments (m)

Tableau 1-3 - Régime d'écoulement en fonction du facteur de Knudsen

Régime d'écoulement	Limite de validité
Continu	$Kn_f < 0,01$
Glissement du fluide	$0,01 \leq Kn_f < 0,5$
Transition	$0,5 \leq Kn_f < 10$
Moléculaire libre	$10 \leq Kn_f$

Selon le nombre de Knudsen relatif aux fibres  $Kn_f$ , Pich définit 4 régimes d'écoulement (Pich 1971), Tableau 1-3 :

- Pour  $Kn_f$  inférieur à 0,01, l'écoulement de l'air est **considéré comme continu**
- Lorsque  $Kn_f$  est compris entre 0,01 et 0,5, c'est le régime d'écoulement où il y a des effets de **glissement du fluide** sur les fibres, c'est le cas des fibres submicroniques.
- Lorsque  $Kn_f$  est compris entre 0,5 et 10, c'est le **régime de transition**.
- Pour  $Kn_f$  supérieur à 10, l'écoulement est qualifié d'écoulement en **régime moléculaire libre**. Cela signifie qu'il faut utiliser la mécanique statistique pour décrire les écoulements de fluides.

### 1.2.1.4 Effet de glissement du fluide

Lorsque  $Kn_f$  est compris entre 0,01 et 0,05, les interactions entre le fluide et la fibre deviennent non négligeables par rapport aux interactions intra moléculaire du fluide. Cela se traduit par un **effet de glissement** au contact de la fibre et du fluide comme le montre Figure 1-10. Ainsi, au contact de la fibre, le gradient de vitesse du fluide devient non nul, la résistance à l'écoulement devient alors plus faible.

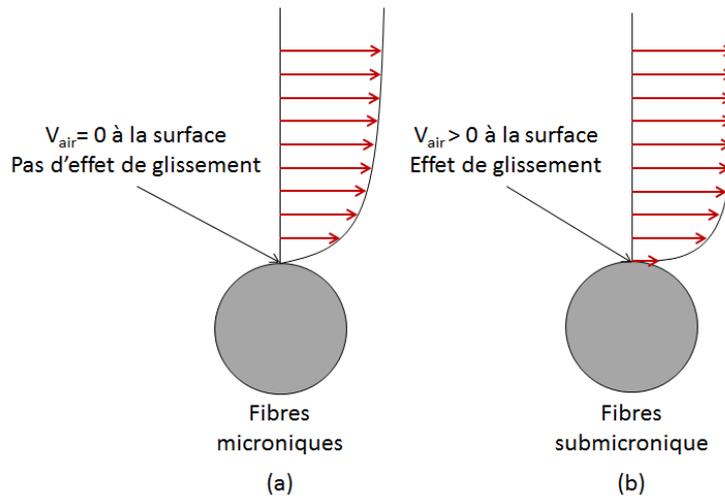


Figure 1-10 - Illustration de l'effet de glissement

Dans ce cas, le facteur de Cunningham  $Cu$ , équation (1-10), doit être utilisé pour corriger la résistance à l'écoulement et par extension la perméabilité  $k$  (Cunningham 1910).

$$Cu = 1 + Kn_f \left[ A + B \exp\left(\frac{-C}{Kn_f}\right) \right] \quad (1-10)$$

Les coefficients A,B et C sont résumés dans le Tableau 1-4 (Millikan 1923; Allen & Raabe 1982; Buckley & Loyalka 1989; Rader 1990; Hutchins et al. 1995; Kim et al. 2005).

Tableau 1-4 - Coefficients A, B et C de Cunningham dans la littérature

Auteurs	A	B	C
Milikan (1923)	1,250	0,420	0,870
Allen-Raabe (1982)	1,155	0,471	0,596
Buckley-Loyalka (1989)	1,099	0,518	0,425
Rader (1990)	1,207	0,440	0,780
Hutchins et al. (1995)	1,231	0,470	1,178
Kim et al. (2005)	1,165	0,483	0,997

La perméabilité corrigée  $k_{corrigée}$  par le facteur de Cunningham se calcule selon l'équation (1-11).

$$k_{corrigée} = C_u k \quad (1-11)$$

## 1.2.2 EFFICACITE

### 1.2.2.1 Définition de l'efficacité

L'**efficacité** d'un filtre correspond à la quantité de particules capturées ou arrêtées par le filtre. Elle est définie selon l'équation (1-12) qui fait intervenir la concentration amont  $C_{amont}$  et la concentration aval  $C_{aval}$  de particules. Elle est donc comprise entre 0 et 1 (Tarleton & Wakeman 2008).

$$E = \frac{C_{amont} - C_{aval}}{C_{amont}} \quad (1-12)$$

Lorsque le filtre a une efficacité très importante, la pénétration  $P$ , qui correspond à la quantité de particules qui a traversé le filtre, devient plus pertinente. Elle s'exprime par l'équation (1-13) et est reliée à l'efficacité.

$$P = \frac{C_{aval}}{C_{amont}} = 1 - E \quad (1-13)$$

### 1.2.2.2 Efficacité de collecte d'un média fibreux

À partir d'un bilan de matière et les caractéristiques intrinsèques du média fibreux telles que la compacité, l'épaisseur et le diamètre des fibres pour des conditions opératoires données (granulométrie des particules, vitesse de filtration ...), il est possible de modéliser l'efficacité théorique  $E_{th}$  d'un média fibreux (Thomas 2001). On obtient alors l'expression de l'efficacité selon l'équation (1-14).

$$E_{th} = 1 - P = 1 - \exp\left(-4 \frac{\alpha}{(1 - \alpha)} \frac{Z}{\pi d_f} \eta_{th}\right) \quad (1-14)$$

Avec :

$\eta_{th}$  : Efficacité unitaire de fibres

L'efficacité unitaire de fibres  $\eta_{th}$  se calcule à partir des caractéristiques intrinsèques du média fibreux combinées aux modèles théoriques analytiques ou empiriques des mécanismes de capture de particules. Nous allons les détailler dans la suite du chapitre.

### 1.2.2.3 Écoulement autour d'une fibre ou d'un ensemble de fibres

Afin de déterminer l'efficacité unitaire de fibres pour chacun des mécanismes de capture de particules, il est nécessaire de déterminer le champ d'écoulement autour d'une fibre. Pour cela, il faut résoudre les équations de Navier-Stokes autour d'un ensemble de fibres dans un média fibreux. Cela permet d'obtenir la fonction de courant par rapport aux composantes de la vitesse, qui s'exprime en fonction d'un facteur hydrodynamique  $H$  (Lamb 1932; Kuwabara 1959; Happel 1959; Kirsch & Fuchs 1968). Selon le régime d'écoulement du fluide, les facteurs hydrodynamiques changent, ainsi lorsqu'il y a des effets de glissement, d'autres facteurs hydrodynamiques peuvent être calculés (Pich 1966; Yeh & Benjamin Y.H. Liu 1974). Les principaux paramètres hydrodynamiques  $H$  sont résumés dans le Tableau 1-5.

Tableau 1-5 – Expression du paramètre hydrodynamique dans la littérature (Thomas 2001)

Auteurs	Expressions	Régime d'écoulement
Kuwabara (1959)	$H_{Ku} = \alpha - \frac{1}{2} \ln \alpha - \frac{1}{4} \alpha - \frac{3}{4}$	Continu
Happel (1959)	$H_{Ha} = \frac{\alpha^2}{1 + \alpha^2} - \frac{1}{2} \ln \alpha - \frac{1}{2}$	Continu
Pich (1966)	$H_{Pi} = -\frac{1}{2} \ln \alpha - \frac{3}{4}$	Glissement du fluide
Kirsch et Stechkina (1968)	$H_{Fan} = 0,5 \ln \alpha - 0,52 + 0,64 \alpha + 1,43(1 - \alpha)Kn_f$	
Yeh et Liu (1974)	$H_{Ye} = \frac{1}{1 + Kn_f} \alpha - \frac{1}{2} \ln \alpha - \frac{1}{4} \alpha^2 - \frac{3}{4(1 + Kn_f)} + \frac{Kn_f(2\alpha - 1)^2}{4(1 + Kn_f)}$	Glissement du fluide

#### 1.2.2.4 Mécanismes de capture des particules

Selon le diamètre des particules  $d_p$ , il existe différents mécanismes de capture de particules par un média fibreux à savoir :

- La diffusion brownienne pour  $d_p < 0,1 \mu\text{m}$
- L'interception directe pour  $d_p > 0,6 \mu\text{m}$
- L'impaction inertielle pour  $d_p > 1 \mu\text{m}$
- Les forces électrostatiques
- La sédimentation  $d_p > 10 \mu\text{m}$
- L'effet tamis  $d_p > 10 \mu\text{m}$

La Figure 1-11 illustre l'efficacité en fonction du diamètre des particules pour les 3 principaux mécanismes de capture de particules : la diffusion brownienne, l'interception directe et l'impaction inertielle. Chacun des mécanismes possède une gamme de diamètres de particules où le mécanisme est le plus prépondérant. La diffusion brownienne est prédominant pour les particules inférieures à  $0,1 \mu\text{m}$ , l'interception directe est prééminent pour des particules supérieures à  $0,6 \mu\text{m}$ , et l'impaction inertielle commence pour des particules supérieures à  $1 \mu\text{m}$ . Cependant, pour les diamètres de particules compris entre  $0,1$  et  $0,6 \mu\text{m}$ , aucun mécanisme n'est prépondérant. Ainsi, le plus souvent, l'efficacité la plus faible mesurée pour un média fibreux concerne les particules comprises dans cette zone, entre  $0,1$  et  $0,6 \mu\text{m}$ .

Le diamètre de particule où le filtre est le moins efficace est qualifié de Most Penetrating Particle Size (MPPS). C'est à ce diamètre de particules que sont évalués les filtres les plus efficaces.

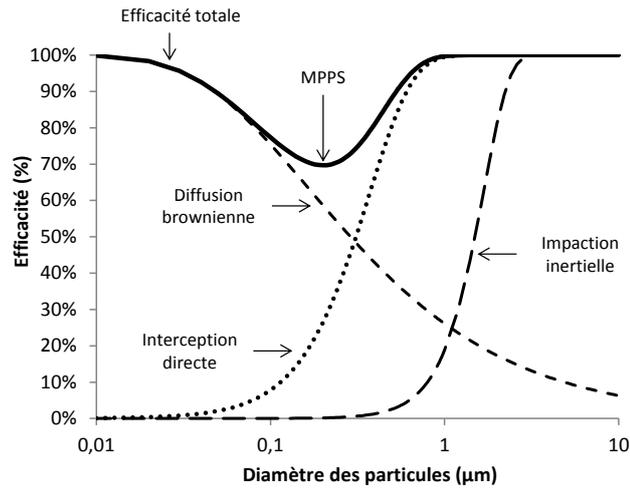


Figure 1-11 – Allure d'efficacité fractionnelles d'un média fibreux en fonction de la taille des particules

### 1.2.2.4.1 La diffusion brownienne

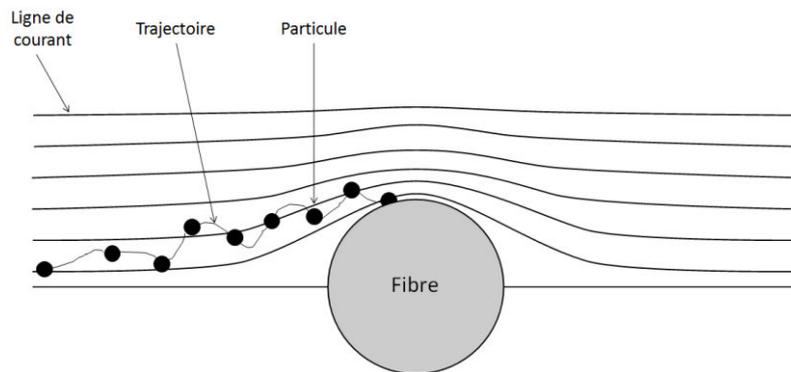


Figure 1-12 – Schéma du mécanisme de diffusion brownien

Lorsque le diamètre des particules  $d_p$  est inférieur à  $0,6 \mu\text{m}$ , les collisions entre les molécules du fluide et les particules deviennent prépondérantes. Les particules quittent alors les lignes de courant et suivent une trajectoire aléatoire qu'on nomme mouvement brownien (Figure 1-12). La capture des particules pour ce phénomène est caractérisée par le **nombre de Péclet  $Pe$**  qui correspond au mouvement convectif du fluide par rapport au mouvement diffusif des particules, équation (1-15). Les modèles d'efficacité unitaire liés au mécanisme de diffusion brownienne sont listés dans le Tableau 1-6 (Langmuir 1948; Stechkina & Fuchs 1966; Stechkina et al. 1969; Kirsch & Zhulanov 1978; Lee & Liu 1982; Liu & Rubow 1990; Payet 1991; Natanson 1987; Davies 1973; Rao & Faghri 1988; Kim et al. 2007).

$$Pe = \frac{d_f V_f}{D_{diff}} \quad (1-15)$$

Avec :

$d_f$  : le diamètre moyen des fibres (m)

$V_f$  : la vitesse superficielle ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

$D_{diff}$  : le coefficient de diffusion ( $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ )

Tableau 1-6 – Expression de l'efficacité unitaire de diffusion  $\eta_d$  (Thomas 2001)

Auteurs	Expressions de $\eta_d$
Langmuir (1948)	$1,7H_{La}^{-1/3}Pe^{-2/3}$
Stechkina, Fuchs (1) (1966)	$2,9H_{Ku}^{-1/3}Pe^{-2/3}$
Stechkina, Kirsh, Fuchs (2) (1969)	$2,9H_{Ku}^{-1/3}Pe^{-2/3} + 0,624Pe^{-1}$
Stechkina, Kirsh, Fuchs (3) (1969)	$2,7Pe^{-2/3}$
Kirsch (1978)	$2,7Pe^{-2/3} \left[ 1 + 0,39H_{Fan}^{-\frac{1}{3}}Pe^{\frac{1}{3}}Kn_f \right] + 0,624Pe^{-1}$
Lee, Liu (1) (1982)	$2,6 \left[ \frac{1-\alpha}{H_{Ku}} \right]^{1/3} Pe^{-2/3}$
Lee, Liu (2) (1982)	$1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{H_{Ku}} \right]^{1/3} Pe^{-2/3}$
Liu, Rubow (1990)	$1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{H_{Ku}} \right]^{1/3} Pe^{-2/3} Cd \quad Cd = 1 + 0,388Kn_f \left[ \frac{(1-\alpha)Pe}{H_{Ku}} \right]^{1/3}$
Payet (1991)	$1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{H_{Ku}} \right]^{1/3} Pe^{-2/3} CdCd' \quad Cd' = \left( 1 + 1,6 \left[ \frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}} \right]^{1/3} Pe^{-\frac{2}{3}} Cd \right)^{-1}$
Natanson (1987)	$1,7H_{La}^{-1/3}Pe^{-2/3}$
Davies (1973)	$1,5Pe^{-2/3}$
Rao, Faghri (1988)	$4,89 \left[ \frac{1-\alpha}{H_{Ku}} \right]^{0,54} Pe^{-0,92}$
Rao, Faghri (1988)	$1,8 \left[ \frac{1-\alpha}{H_{Ku}} \right]^{1/3} Pe^{-2/3}$
Wang et al. (2007)	$0,84Pe^{-0,43}$

### 1.2.2.4.2 Interception directe

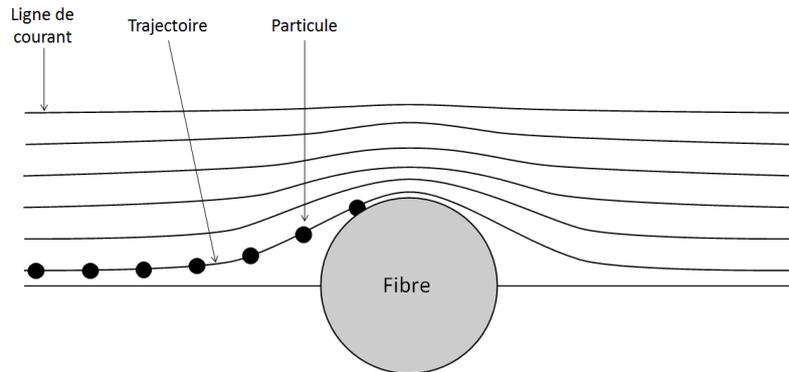


Figure 1-13 - Schéma du mécanisme d'interception directe

Ce mécanisme concerne les particules avec un diamètre supérieur à  $0,1 \mu\text{m}$ . Les particules qui suivent les lignes de courant peuvent être interceptées par la fibre lorsque le diamètre de la fibre est plus grand que la distance entre le centre de la particule et la fibre (Figure 1-13).

Tableau 1-7 - Expression de l'efficacité unitaire d'interception directe  $\eta_i$  (Thomas 2001)

Auteurs	Expressions de $\eta_i$	
Yeh, Liu (1974)	$\frac{1}{2H_{Ku}} [2(1 + R) \ln(1 + R) - (1 + R) + \frac{1}{1 + R}]$	
Kirsch (1978)	$\frac{1}{2H_{Ku}} \left[ \frac{1}{1 + R} + 2(1 + R) \ln(1 + R) - (1 + R) + \frac{2,86(2 + R)R}{1 + R} Kn_f \right]$	
Lee, Liu (1982)	$0,6 \frac{1 - \alpha}{H_{Ku}} \frac{R^2}{1 + R}$	
Cai cité par Miecret (1989)	$2,4\alpha^{1/3} R^{1,75}$	
Nantanson (1987)	$\frac{R(R + 1,996Kn_f)}{H - 1,996Kn_f(H + 0,5)}$	$H = -0,7 - 0,5 \ln \alpha$
Liu, Rubow (1990)	$0,6 \frac{1 - \alpha}{H_{Ku}} \frac{R^2}{1 + R} Cr$	$Cr = 1 + 1,996 \frac{Kn_f}{R}$

Ce mécanisme est caractérisé par le **nombre d'interception R**, qui est le rapport entre le diamètre de la particule et le diamètre de la fibre, équation (1-16).

$$R = \frac{d_p}{d_f} \tag{1-16}$$

Avec :

$d_p$  : Diamètre de la particule (m)

$d_f$  : Diamètre de la fibre (m)

Le Tableau 1-7 résume les expressions des efficacités unitaires d'interception directe recensées dans la littérature (Yeh & Benjamin Y H Liu 1974; Kirsch & Zhulanov 1978; Lee & Liu 1982; Miecret & Gustavsson 1989; Natanson 1987; Liu & Rubow 1990).

### 1.2.2.4.3 Impaction inertielle

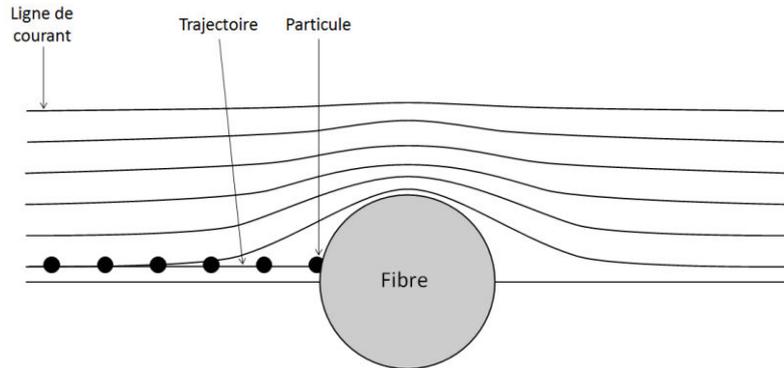


Figure 1-14 - Schéma du mécanisme d'impaction inertielle

Les particules avec un diamètre supérieur à 1  $\mu\text{m}$  peuvent acquérir une inertie suffisante qui leur fait quitter les lignes de courant et suivre des trajectoires rectilignes. Ainsi, lors de changement de direction trop brusque comme lors du passage près d'une fibre, les particules viennent alors en contact de la fibre (impact) et sont capturées par la fibre (Figure 1-14). La capture par impaction est caractérisée par le nombre de Stokes  $Stk$ , qui est le rapport entre la distance d'arrêt de la particule et une longueur caractéristique de la fibre, équation (1-17).

$$Stk = \frac{C_u \rho_p d_p^2 V_f}{18 \mu d_f} \quad (1-17)$$

Avec :

$C_u$  : Coefficient de correction de Cunningham

$\rho_p$  : Masse volumique de la particule ( $\text{kg/m}^3$ )

$d_p$  : Diamètre de la particule (m)

$V_f$  : Vitesse superficielle (m/s)

$d_f$  : Diamètre des fibres (m)

$\mu$  : Viscosité dynamique de l'air (Pa.s)

Le Tableau 1-8 regroupe les différentes expressions d'efficacité unitaire d'impaction inertielle dans la littérature (Langmuir 1948; Ilias & Douglas 1989; Stechkina et al. 1969; Friedlander 1967; Gougeon 1994; Landahl & Herrmann 1949; Suneja & Lee 1974).

Tableau 1-8 - Expression de l'efficacité unitaire d'impaction inertielle  $\eta_i$  (Thomas 2001)

Auteurs	Expressions de $\eta_i$
---------	-------------------------

Langmuir (1948)		$\frac{Stk^2}{(1 + 0,55Stk)^2}$
Friedlander (1967)		$0,075Stk^{6/5}$
Stechkina (1969)	$\frac{IStk}{(2H_{ku})^2}$	$I = (26,9 - 28\alpha^{0,62})R^2 - 27,5R^{2,8}$
Gougeon (1994)		$0,0334 Stk^{3/2}$
Landahl, Hermann (1949)		$\frac{Stk^3}{Stk^3 + 0,77Stk^2 + 0,22}$
Suneja, Lee (1974)		$\left(1 + \frac{1,53 - 0,23 \ln(Re_f) + 0,0167(\ln(Re_f))^2}{Stk}\right)^{-2}$
Ilias, Douglas (1989)		$\frac{Stk^3 + \frac{1,622 * 10^{-4}}{Stk}}{1,031Stk^3 + (1,14 + 0,04044 \ln(Ref)) Stk^2 + 0,01479 \ln(Ref) + 0,0213}$

#### 1.2.2.4.4 Forces électrostatiques

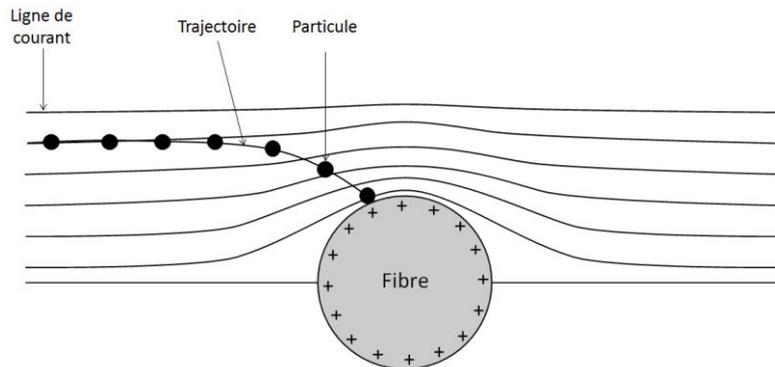


Figure 1-15 - Schéma du mécanisme de capture par des forces électrostatiques

Lorsque les particules ou les fibres sont chargées électro statiquement, des forces attractives sont générées entre les particules et les fibres. Lorsque les forces attractives atteignent une intensité suffisante pour mettre en contact une particule et une fibre, la particule est capturée par la fibre.

La Figure 1-15 représente un exemple de capture de particules par des forces électrostatiques. Selon que la particule ou la fibre est chargée, on distingue plusieurs forces attractives (Thomas 2001) :

- Une particule chargée et une fibre neutre : force image
- Une particule neutre et une fibre chargée : force de polarisation
- Une particule chargée et une fibre chargée : force coulombienne.

#### 1.2.2.4.5 La sédimentation

En raison de la gravité, les particules les plus lourdes peuvent sédimenter. Ce mécanisme de sédimentation concerne les particules avec un diamètre supérieur à 10 µm.

#### 1.2.2.4.6 L'effet tamis

Les particules avec un diamètre supérieur à la distance entre deux fibres se bloquent entre les deux fibres : c'est l'effet tamis. Il concerne surtout les particules supérieures à 10 µm.

#### 1.2.2.4.7 Efficacité unitaire globale d'un filtre

Pour calculer l'efficacité unitaire globale  $\eta_{th}$  réunissant les trois principaux mécanismes, plusieurs modèles existent. La plupart des auteurs proposent de sommer ces efficacités unitaires en les supposant indépendants, d'autres ajoutent un terme lié à l'interaction entre la diffusion et l'interception  $\eta_{dr}$  (Stechkina et al. 1969), équation (1-18).

$$\eta_{dr} = 1,24 H_{Ku\ ou\ Fan}^{-0,5} R^{\frac{2}{3}} P e^{-0,5} \quad (1-18)$$

Les expressions de l'efficacité unitaire globale  $\eta_{th}$  sont résumés dans le Tableau 1-9 (Thomas 2001).

Tableau 1-9 - Expression de l'efficacité unitaire globale  $\eta_{th}$

Auteurs	Expressions de $\eta_{th}$	$\eta_d$	$\eta_r$	$\eta_i$	$\eta_{dr}$
Miecret et Gustavsson	$\eta_d + \eta_r + \eta_i + \eta_{dr}$	Davies	Cai	Suneja et Lee	Stechkina
Lee et Liu	$\eta_d + \eta_r$	Lee et Liu (2)	Lee et Liu		
Liu et Rubow	$\eta_d + \eta_r$	Liu et Rubow	Liu et Rubow		
Payet	$\eta_d + \eta_r$	Payet	Liu et Rubow		
Gougeon	$\eta_d + \eta_r + \eta_i$	Lee et Liu (2)	Lee et Liu	Gougeon	
Stechkina et al.	$\eta_d + \eta_r + \eta_i + \eta_{dr}$	Stechkina (3)	Yeh et al.	Stechkina	Stechkina
Kirsch et al.	$\eta_d + \eta_r + \eta_{dr}$	Kirsch	Kirsch		Kirsch

### 1.2.3 INTERET ET PERFORMANCES DES FIBRES SUBMICRONIQUES EN FILTRATION DE L'AIR

Pour montrer l'intérêt théorique des fibres submicroniques en filtration de l'air, nous allons nous appuyer sur les modèles décrits précédemment afin de réaliser 2 types de simulation.

La première simulation consiste à simuler l'efficacité de médias fibreux avec une perte de charge constante de 100 Pa. Pour cela, nous fixons le diamètre moyen et la compacité du média fibreux puis nous calculons l'épaisseur nécessaire afin d'atteindre la perte de charge de 100 Pa à l'aide du modèle de perméabilité de Jackson & James (Jackson & James 1986). Ensuite, nous simulons l'efficacité à l'aide du modèle d'efficacité de Gougeon (Gougeon 1994) en utilisant l'épaisseur nécessaire afin d'atteindre une perte de charge de 100 Pa. Les conditions des simulations sont détaillées dans le Tableau 1-10.

La deuxième simulation consiste à simuler la perte de charge pour une efficacité constante de 80%. Pour cela, nous fixons le diamètre moyen et la compacité du média fibreux puis nous calculons l'épaisseur nécessaire afin d'atteindre une efficacité de 80% à l'aide du modèle d'efficacité de Gougeon. Ensuite, nous simulons la perte de charge à l'aide du modèle de perméabilité de Jackson et James en utilisant l'épaisseur nécessaire afin d'atteindre une efficacité de 80%. Les conditions des simulations sont détaillées dans le Tableau 1-10.

Tableau 1-10 – Conditions de simulations des performances de filtration

<b>Conditions de simulations des performances de filtration</b>	
<b>Efficacité théorique</b>	Modèle d'efficacité de Gougeon (Tableau 1-9)
<b>Modèle perte de charge</b>	Perméabilité de Jackson & James
<b>Coefficient de Cunningham</b>	Coefficient de Rader, 1990 (Tableau 1-4)
<b>Vitesse de filtration</b>	5 cm/s
<b>Viscosité de l'air à 23°C</b>	$1,8 * 10^{-5}$ Pa.s
<b>Masse volumique de l'air à 23°C</b>	1,2 kg/m <sup>3</sup>
<b>Libre parcours moyen de l'air</b>	67,3 nm
<b>Type de particules</b>	Particules de sel
<b>Masse volumique de particules</b>	2,170 kg/m <sup>3</sup>
<b>Diamètre des filaments</b>	de 0,2 à 10 µm
<b>Compacité</b>	7%

À partir de ces deux types de simulation, nous avons représenté l'efficacité en fonction du diamètre des filaments pour une perte de charge de 100 Pa (Figure 1-16), la perte de charge en fonction du diamètre des filaments pour une efficacité de 80% (Figure 1-17). Ces deux représentations montrent que lorsque le diamètre des filaments diminue les performances de filtration augmentent. En effet, lorsque le diamètre des filaments baisse, l'efficacité, à taille de particule constante, augmente pour une même perte de charge et la perte de charge diminue pour une même efficacité, à taille de particules constante.

Même si les performances augmentent constamment, les deux figures montrent qu'à partir de 2 µm, l'augmentation des performances est de plus en plus importante à mesure que le diamètre des filaments diminue. Cela s'explique par l'effet de glissement qui est de plus en plus important à mesure que le diamètre des filaments diminue.

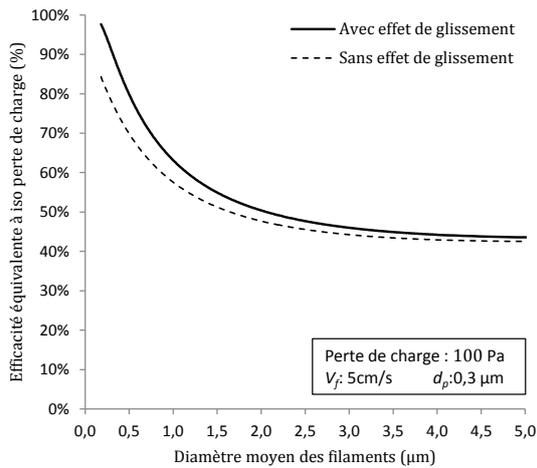


Figure 1-16 – Efficacité à iso perte de charge (100 Pa) en fonction du diamètre moyen des filaments avec et sans effet de glissement.  
 $V_f = 5 \text{ cm/s}$  et  $d_p = 0,3 \text{ μm}$

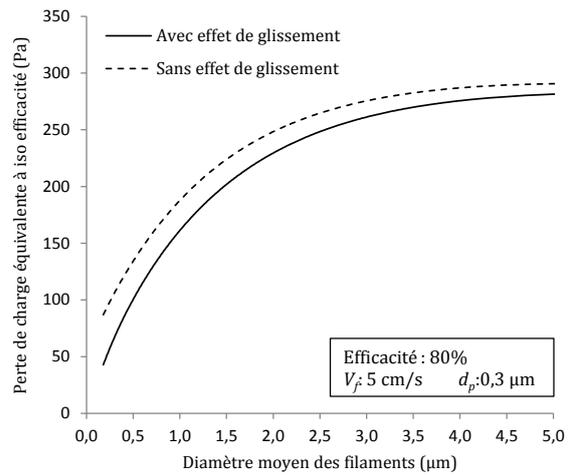


Figure 1-17 – Perte de charge à iso efficacité (80%) en fonction du diamètre moyen des filaments avec et sans effet de glissement.  
 $V_f = 5 \text{ cm/s}$  et  $d_p = 0,3 \text{ μm}$

En définitive, les deux simulations soulignent l'intérêt de produire des médias fibreux avec des fibres submicroniques.

L'utilisation de fibres submicroniques possède d'autres avantages comme l'utilisation moins importante de matière première. Comme les performances sont plus importantes avec des fibres ultrafines, moins de matières sont nécessaires pour atteindre les performances d'un média avec des fibres conventionnelles. Dans le cas des nontissés où la matière première constitue le coût principal, cela peut représenter une baisse significative des coûts (Wilson 2006; Barhate & Ramakrishna 2007).

## 1.3 ETAT DE L'ART DES METHODES DE FABRICATION DE STRUCTURES AVEC DES FIBRES SUBMICRONIQUES

Nous avons mis en évidence que des médias fibreux à fibres submicroniques permettent d'augmenter théoriquement les performances de filtration par rapport à un média fibreux conventionnel. Dans cette partie, nous allons présenter et comparer les différentes méthodes de fabrication de médias fibreux à fibres submicroniques.

De nombreuses entreprises ont investi le marché des fibres submicroniques aussi bien aux États-Unis (Donaldson, Hills...) qu'en Asie (Toray, Finetex EnE...) ou encore en Europe (Mann-Hummel, Elmarco...) afin de profiter des avantages offerts par les fibres submicroniques. Le Tableau 1-11 regroupe les principales entreprises qui investissent dans la recherche et le développement de fibres submicroniques regroupées par pays. Par exemple, Donaldson Company Inc ajoute des couches de fibres submicroniques sur certains de ces filtres air moteur afin d'augmenter l'efficacité initiale (Jaroszcyk et al. 2008) tandis que Hills Inc s'est spécialisé dans la conception et la fabrication de procédé permettant d'obtenir des fibres submicroniques (Hills 2016; Barhate & Ramakrishna 2007).

Tableau 1-11 – Entreprises dans le marché des fibres submicroniques

<b>Entreprises</b>	<b>Pays</b>	<b>Adresse</b>
Donaldson Company Inc.	États-Unis	<a href="https://www.donaldson.com/">https://www.donaldson.com/</a>
Espin Technologies Inc.	États-Unis	<a href="http://www.espintechnologies.com">http://www.espintechnologies.com</a>
Hills Inc.	États-Unis	<a href="http://hillsinc.net/">http://hillsinc.net/</a>
Hollingsworth Co. Ltd.	États-Unis	<a href="http://www.hollingsworth-vose.com/">http://www.hollingsworth-vose.com/</a>
KX Industries	États-Unis	<a href="http://www.kxtech.com">http://www.kxtech.com</a>
US Global Nanospace	États-Unis	<a href="http://www.usgn.com/">http://www.usgn.com/</a>
Hohns Manville Sales GmbH	Allemagne	<a href="http://www.jm.com">http://www.jm.com</a>
Mann Hummel	Allemagne	<a href="https://www.mann-hummel.com">https://www.mann-hummel.com</a>
Nanoval GmbH & Co. KG	Allemagne	<a href="http://www.nanoval.de">http://www.nanoval.de</a>
Japan Vilene Company Ltd.	Japon	<a href="http://www.vilene.co.jp">http://www.vilene.co.jp</a>
Teijin Fibers Ltd.	Japon	<a href="http://www.teijin.com">http://www.teijin.com</a>
Toray	Japon	<a href="http://www.toray.com">http://www.toray.com</a>
Finetex EnE Inc.	Corée du Sud	<a href="http://www.ftene.com/">http://www.ftene.com/</a>
Nano Technics Co. Ltd.	Corée du Sud	/
Alhstrom Corporation	Finlande	<a href="http://www.ahlstrom.com">http://www.ahlstrom.com</a>
Elmarco	République tchèque	<a href="http://www.elmarco.com/">http://www.elmarco.com/</a>
Esfil Techno	Estonie	<a href="http://esfiltehnо.ee">http://esfiltehnо.ee</a>

Les trois méthodes les plus utilisées actuellement pour le développement de fibres ultrafines sont l'électrospinning, le procédé meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes. D'autres techniques existent, mais elles restent à l'échelle du laboratoire (Template synthesis...) ou sont encore en développement (rotor-spinning). Ces différentes technologies ou méthodes seront détaillées dans la suite.

### 1.3.1 ELECTROSPINNING

#### 1.3.1.1 Historique de l'électrospinning

Le début de l'électrospinning commence avec Morton et Cooley qui découvrent les bases du procédé en 1902, notamment à travers deux brevets américains. Ensuite, Formhals dépose une série de 9 brevets qui améliorent les conditions de fonctionnement du procédé d'électrospinning afin de fabriquer des fibres fines. Néanmoins, les technologies de l'époque ne permettaient ni d'optimiser le procédé ni d'obtenir des fibres submicroniques. En 1995, Doshi et Reneker (Doshi & Reneker 1995) s'intéressent au procédé d'électrospinning et réussissent à obtenir des fibres submicroniques. De plus, ils identifient un certain nombre d'applications liées au textile, au génie médical ou encore aux membranes. C'est à ce moment, que le terme électrospinning est utilisé et que l'utilisation de cette méthode se développe (Huang et al. 2003).

#### 1.3.1.2 Principe de l'électrospinning

Le principe de l'électrospinning est de filer des filaments à l'aide d'une force électrostatique. Classiquement, une tension est générée entre une seringue qui contient une solution de polymère chargée et un collecteur conducteur. Lorsque la tension électrique atteint un seuil, le polymère au bout de la seringue forme un cône de Taylor qui émet ensuite des jets vers le collecteur. Les jets de polymères s'accumulent alors sur le collecteur pour former un voile d'électrospinning à fibres submicroniques (Doshi & Reneker 1995). Le schéma de la Figure 1-18 résume le fonctionnement du procédé d'électrospinning. Le plus souvent, les fibres s'accumulent sur un support pour pouvoir être ensuite manipulées. Les fibres submicroniques obtenues sont le plus souvent comprises entre 40 et 500  $\mu\text{m}$ .

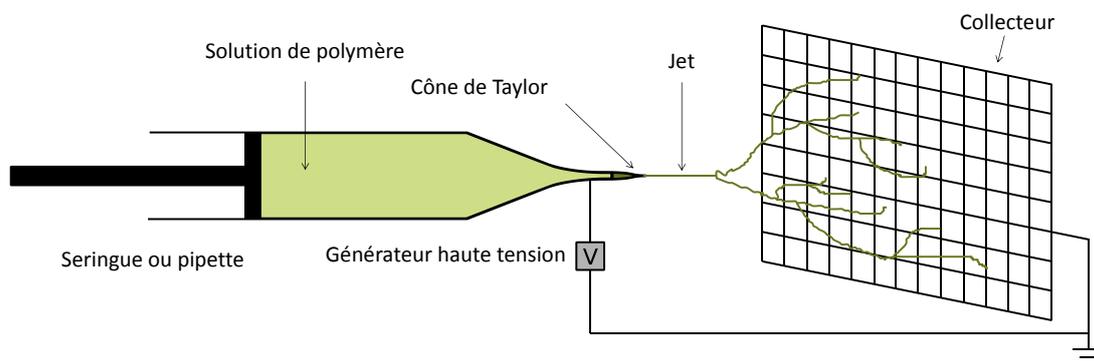


Figure 1-18 – Principe du procédé d'électrospinning

Afin d'augmenter la productivité, il existe différentes possibilités : augmenter le nombre de seringues, créer plusieurs jets à partir d'une même seringue, ou créer des systèmes sans seringue (Nayak et al. 2012).

### *1.3.1.3 Variantes de l'électrospinning*

#### **1.3.1.3.1 Bubble-electrospinning**

L'innovation du bubble-electrospinning réside dans la création des jets de polymères. Au lieu d'utiliser une seringue au bout de laquelle se forment un cône de Taylor puis des jets de polymères, ces derniers sont créés à la surface de bulles. Pour cela, un gaz est injecté dans une solution de polymère créant alors des bulles qui remontent en surface. Lorsque les bulles atteignent la surface, des jets de polymères sont créés à partir de la couche de polymères à la surface de la bulle. Avec cette technique, le nombre de jets n'est plus limité par le nombre de seringues ce qui augmente la productivité (Nayak et al. 2012).

#### **1.3.1.3.2 Electro-blowing**

L'électro-blowing ressemble au procédé d'électrospinning classique. La seule différence est la présence d'injecteur d'air à la sortie de la seringue. L'air soufflé étire alors davantage les jets de polymères. Cela permet d'augmenter le débit de polymères tout en ayant des filaments aussi fins qu'avec un procédé classique (Nayak et al. 2012).

#### **1.3.1.3.3 Utilisation de tube creux poreux cylindrique**

Dans cette variante, un tube creux, cylindrique et poreux remplace les seringues. La solution de polymère chargée est insérée au centre du tube puis traverse la paroi poreuse du tube. Lorsque le polymère atteint l'extérieur du tube, il est soumis à un champ électrique et génère des jets de polymères. Afin de contrôler le nombre et la direction de jets de polymères, des passages préférentiels d'écoulement de polymères sont créés. Pour cela, une rangée de trous est percée à intervalle régulier et est orientée vers le collecteur. Cette méthode permet d'augmenter le nombre de jets de polymères et par conséquent la productivité (Nayak et al. 2012).

#### **1.3.1.3.4 Injecteur microfluide**

Dans ce système, un injecteur microfluide remplace la seringue. La solution de polymères chargée est injectée dans une filière composée de micros canaux au bout desquels se forment les jets de polymères lorsqu'ils sont soumis à une certaine tension. Ce système augmente le nombre de jets de polymères par rapport à un procédé d'électrospinning classique, mais nécessite une filière parfaitement dimensionnée (Nayak et al. 2012).

#### **1.3.1.3.5 Roller electrospinning**

Cette méthode propose d'utiliser la surface d'un rouleau exposée à un champ électrique afin de générer les jets de polymères. Pour cela, un rouleau tourne dans un bac de solution de polymères chargée. De cette manière, un côté du rouleau s'imbibe de la solution de la polymère tandis que l'autre côté s'expose au champ électrique et génère des jets de polymères (Nayak et al. 2012). La société Elmarco propose un procédé industriel qui se fonde sur cette méthode : le Nanospider™ illustré à la Figure 1-19.



Figure 1-19 – Photo d'un procédé industriel d'électrospinning Nanospider™

### 1.3.1.3.6 Melt electrospinning

Un des inconvénients du procédé d'électrospinning classique est l'utilisation de solvant pour obtenir une solution de polymère. Une alternative au mélange solvant et polymère est de chauffer directement le polymère pour qu'il soit suffisamment fluide pour créer des jets d'électrospinning. Cette méthode est seulement possible pour des polymères adaptés (Nayak et al. 2012).

## 1.3.2 MEDIAS FIBREUX A FIBRES DE VERRE OBTENUS PAR VOIE HUMIDE

Afin d'obtenir des fibres de verre, une formulation à base de silice est chauffée à 1500°C pour rendre le verre suffisamment fluide et homogène. Puis, le verre fondu est extrudé, étiré, filé à l'aide d'une filière. Les filaments sont ensuite séchés à 800°C avant d'être bobinés. Les filaments de verre peuvent être ensuite coupés en fibres courtes pour être utilisés comme matière première (Loewenstein 1973).

Pour former un média fibreux, les fibres de verre obtenues sont assemblées en voie humide. Pour cela, les fibres sont mises en suspension dans de l'eau. La suspension peut être mélangée, mélangée afin d'être homogénéisée ou nettoyée. Pour éliminer l'eau, une possibilité est de filtrer la suspension à l'aide d'un filtre presse. Cependant, cette méthode génère des médias trop compacts pour la filtration de l'air. Une deuxième possibilité consiste à sécher la suspension en utilisant un four à air chaud sans compacter le média.

Une fois le voile formé, il doit être consolidé. Selon les applications, des fibres thermoplastiques liantes peuvent être ajoutées à la suspension ainsi lors de l'étape de séchage les filaments vont fondre et consolider le voile. Le contrôle de la quantité de fibres liantes et des conditions de chauffage (température, utilisation d'une calandre...) permet créer un média selon les propriétés physiques souhaitées comme la perméabilité.

Une deuxième approche consiste à incorporer des additifs dans la suspension pour à la fois consolider le média mais aussi augmenter sa résistance mécanique lorsque le média est sec.

Une troisième possibilité est d'appliquer une résine sur le média séché pour consolider mais aussi le protéger de l'environnement extérieur (Hutten 2015; White 2006).

Actuellement, la majorité des filtres à haute efficacité (HEPA) ou ultra faible pénétration (ULPA) sont des médias fibreux à fibres de verre. En effet, leur diamètre micronique ou submicronique ( $<1 \mu\text{m}$ ) et leur compacité élevée permettent d'atteindre des efficacités très importantes. Par contre, ces médias possèdent une perte de charge élevée et s'obstruent (colmate) rapidement (Hutten 2015).

D'un point de vue industriel, la production élevée de ce type de média peut atteindre 300 m/min pour des largeurs de 5 m (Hutten 2015).

Un des inconvénients importants des fibres de verre sont leur toxicité. Suite à la mise en évidence de la toxicité de l'amiante, les fibres de verre sont susceptibles d'être cancérogènes (U.S. Department of Health and Human Services 2004).

### 1.3.3 PROCÉDE « NANO » MELTBLOWN

#### 1.3.3.1 Historique du procédé meltblown

Le début de la technologie meltblown commence dans les années 50 où Van A. Wenté réussit à créer des microfibrilles ( $<10 \mu\text{m}$ ) au sein du Naval Research Laboratory. Le but était alors de créer des microfibrilles afin de collecter les particules radioactives dans la haute atmosphère en réponse aux essais nucléaires après la Seconde Guerre mondiale.

Avant cette période, différentes technologies comme le spray gun, développé en 1939 par Carlton Francis, existent, mais ne sont pas optimisées pour la création de microfibrilles. Malgré l'approfondissement des recherches dans les années 40 par American viscose, Dow Chemical Company ou encore Chemstrand Company (Monsanto aujourd'hui), les recherches ont été jugées non intéressantes et abandonnées.

L'essor du meltblown a lieu dans les années 60 où Esso Research and Engineering Company (ExxonMobil Corp) comprend le réel potentiel des travaux de Van A. Wenté. Au sein d'ExxonMobil, Robert Buntin et Dwight Lohkamp abaissent le coût du procédé et augmentent l'échelle de production. Par la suite, Exxon dépose le premier brevet du procédé meltblown capable de produire des fibres microniques en polypropylène.

Dans les années 70, Exxon montre le potentiel des fibres microniques dans de nombreuses applications (filtration, hygiène ...) et commence à vendre des licences d'utilisation du procédé meltblown à des entreprises telles que Kimberley-Clark, Johnson & Johnson, James River, Web dynamics, Ergon nonwoven. En parallèle, Exxon s'appuie sur des équipementiers tels qu'Accurate Products et Reifenhauer pour réaliser les filières et les accessoires. Exxon concentre alors ses activités sur le développement de polymères adaptés au meltblown.

En 1983, Exxon s'associe à l'université du Tennessee à Knoxville en construisant un pilote meltblown dédié à la recherche afin de maintenir l'amélioration et l'évolution de la technologie meltblown. En 1989, ce laboratoire devient le TANDEC (Textiles and Nonwoven Development Center) (Dutton 2008; McCulloch 1999).

Depuis 2000, des procédés bicomposants meltblown sont apparus et permettent de créer des filaments bicomposants avec des configurations noyau/écorce (Figure 1-23 (a)) ou side-by-side (Figure 1-23 (b)) (Zhang et al. 2004; Zhao et al. 2002).

Plus récemment, des filières dédiées à la production de fibres submicroniques ont été développées (Hills 2016; Hammonds et al. 2014; Hassan et al. 2013). Le procédé meltblown est alors appelé procédé « nano » meltblown.

### 1.3.3.2 Principe du procédé « nano » meltblown

Le procédé meltblown est présenté dans la Figure 1-20, il est composé de plusieurs étapes : l'étape d'extrusion, l'étape de filage, l'étape d'étirage à chaud, l'étape de refroidissement et la formation du voile (Bhat & Malkan 2006). Tout d'abord, des granulés de polymères sont insérés dans une extrudeuse, ils sont alors cisailés à l'aide d'une vis et soumis à un gradient de température pour pouvoir être fondus. Le polymère fondu passe à travers des filtres afin de retirer les impuretés et entre dans une pompe volumétrique. La pompe volumétrique contrôle le débit du polymère et remplit la plaque de distribution de la filière qui répartit uniformément la matière dans chacun des capillaires. Les filaments se forment alors en traversant les capillaires. Le nombre et la densité des filaments dépendent de la taille et de la densité des capillaires de la filière. À la sortie de la filière, deux injecteurs soufflent de l'air chaud. Les filaments sont alors étirés et projetés sur un collecteur équipé d'un système d'aspiration afin de plaquer les fibres sur le collecteur (Bhat & Malkan 2006).

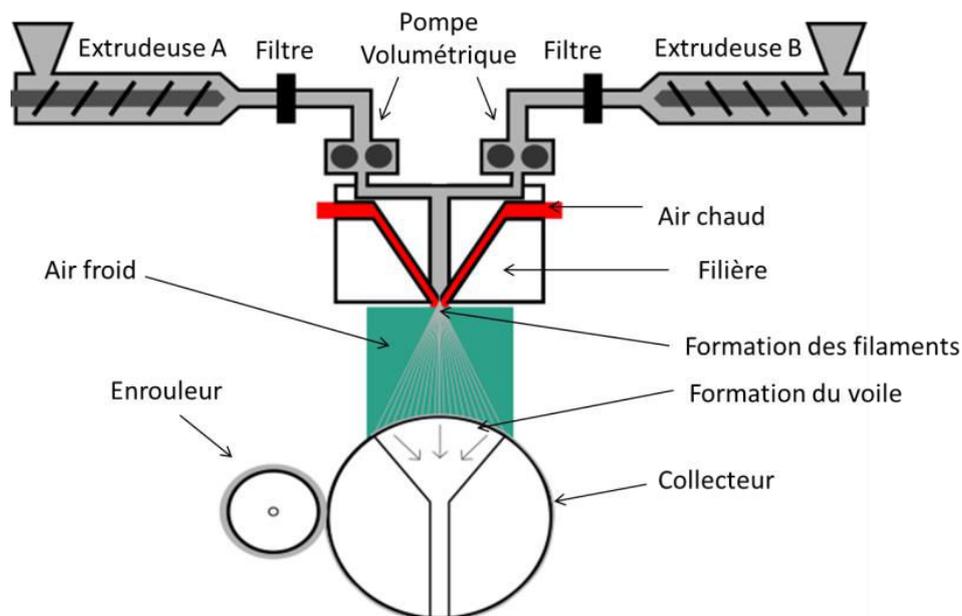


Figure 1-20- Schéma du procédé meltblown

La Figure 1-21 et la Figure 1-22 illustrent des observations MEB de structures meltblown en vue de dessus pour deux grossissements. Sur ces images, les fibres sont réparties aléatoirement et ont un diamètre moyen inférieur à 1  $\mu\text{m}$ .

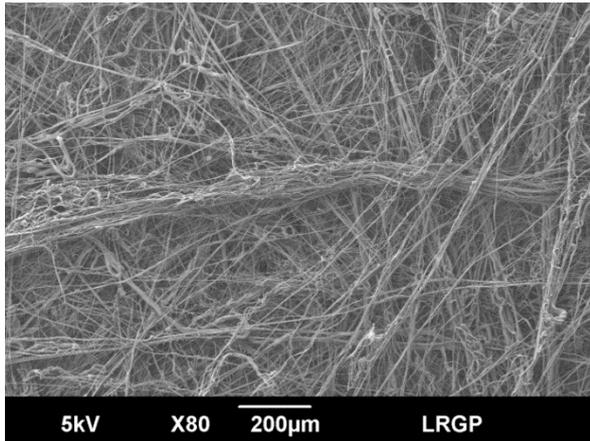


Figure 1-21 – Vue de dessus d’une structure meltblown

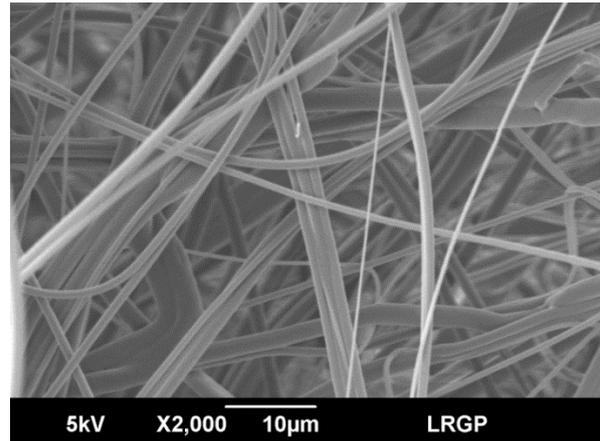


Figure 1-22 – Vue de dessus de fibres meltblown

Un nombre de polymères important peut être utilisé en meltblown même si le polypropylène est principalement utilisé (Bhat & Malkan 2006). Le Tableau 1-12 regroupe les polymères utilisés en meltblown.

Tableau 1-12 – Polymères Meltblown (Bhat & Malkan 2006; Dutton 2008)

Commun	Autres
Polypropylène (PP)	Ethylène-acétate de vinyle (EVA), Ethylène-alcool de vinyle (EVOH)
Polyéthylène (PE)	Polytéréphtalate de butylène (PBT)
Low and high density polyéthylène (LLDPE, LDPE, HDPE)	Polysulfure de phénylène (PPS)
Polystyrène (PS)	Fluoropolymères
Polytéréphtalate d'éthylène (PET)	
Polyurethane (PU)	Acide polylactique (PLA)
Polyamide (PA6, PA66, PA11, PA12)	
Polycarbonate (PC)	

Avec le procédé meltblown, il est possible de produire des fibres submicroniques. Pour cela, des filières « nano » dédiées ont été développées ces dernières années. Le plus souvent, elles permettent de travailler à des débits de polymères plus faibles (densité de trous plus importante) et à des débits d'air plus importants (air gap et setback plus petit) pour ainsi produire des filaments plus fins. Il est possible de produire des fibres jusqu'à 300 nm (Hassan et al. 2013; Hammonds et al. 2014).

### 1.3.4 FIBRES BICOMPOSANTES ILES-EN-MER

#### 1.3.4.1 Historique de l'utilisation des fibres bicomposantes

Les fibres bicomposantes regroupent les fibres composées de deux polymères différents. Les premières fibres bicomposantes apparaissent au milieu des années 60. Par exemple, DuPont utilisait des fibres bicomposantes côte-à-côte, nommées « cantrese » avec deux types de nylons. Dans les années 70, de nombreuses variantes émergent, notamment au Japon. Cependant, les technologies permettant de créer ces fibres bicomposantes nécessitent l'utilisation de filières complexes rendant le procédé cher et peu fiable. C'est en 1989, avec l'émergence de filière

fondée sur un empilement de plaques, beaucoup plus simple qu'auparavant, que la fabrication de fibres bicomposantes s'est développée (Hedge et al. 2004).

Il existe une multitude de formes de fibres. La Figure 1-23 résume les principales formes de fibres bicomposantes : côte-à-côte (side-by-side) (a), noyau/écorce (sheath/core) (b), segmenté (Pie Wedge) (c), segmenté creux (d), îles-en-mer (islands-in-the-sea) (e).

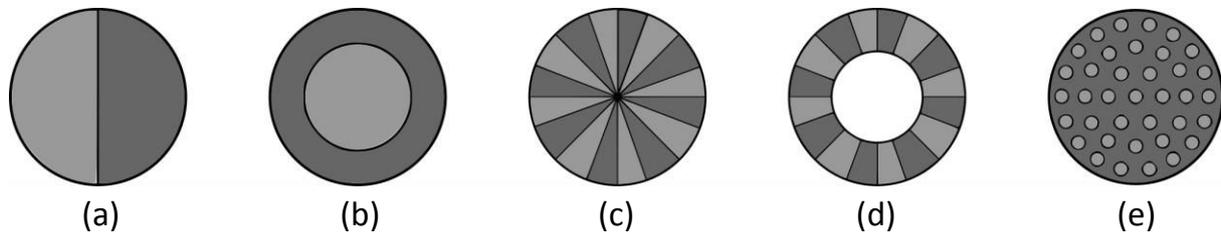


Figure 1-23 – Section de fibres bicomposantes

Les fibres côte-à-côte (Figure 1-23 (a)) permettent de « friser » les fibres. En effet, en utilisant deux polymères qui ne refroidissent pas de la même manière, un des polymères va se rétracter davantage ce qui va faire courber la fibre et créer cet effet de frisage. D'autres effets physiques peuvent être mis en jeu pour générer ce frisage (Bhat & Malkan 2006; Hedge et al. 2004).

Les fibres noyau/écorce (Figure 1-23 (b)) permettent de combiner deux propriétés de polymères. Par exemple, les propriétés recherchées pour le polymère de surface (écorce) sont sa capacité à se teindre, sa douceur ou encore sa brillance. Au contraire, pour le polymère au centre (noyau), les propriétés recherchées sont sa résistance ou son faible coût.

Une autre application des fibres noyau/écorce est leur utilisation en tant qu'agent de liaison. Lorsque le polymère extérieur (écorce) à une température de fusion plus faible que le polymère au centre de la fibre (noyau), il suffit de chauffer un voile de fibres noyau/écorce à l'aide d'un four ajusté pour faire fondre uniquement la partie extérieure (écorce). Le résultat est un matériau plus rigide et plus résistant (Brunnschweiler et al. 2006; Hedge et al. 2004; Bhat & Malkan 2006).

Les fibres segmentées (Figure 1-23 (c)) sont destinées à être éclatées, c'est-à-dire séparer chaque segment de la fibre segmenté. Pour cela, un procédé mécanique comme l'hydroliage ou l'aiguillage peut être utilisé. L'exemple le plus connu est le produit Evolon® qui associe des fibres segmentées en polyamide et en polyester éclatées par hydroliage. Les fibres segmentées peuvent être creuses afin de faciliter l'éclatement (Figure 1-23 (d)). Le nombre de segments varie généralement entre 16 et 64 segments. (Brunnschweiler et al. 2006; Hedge et al. 2004; Bhat & Malkan 2006).

Les fibres îles-en-mer (Figure 1-23 (e)) sont dédiées à la production de fibres submicroniques. L'utilisation des fibres bicomposantes avec une étape de dissolution ou de séparation permet d'obtenir des fibres submicroniques (Figure 1-24). La dissolution d'un composant d'une fibre îles-en-mer est une méthode déjà utilisée pour créer du cuir synthétique (Hiokki 1990) avec un nombre d'îles compris entre 37 et 47 (Durany et al. 2009). Cependant, cette méthode nécessite l'utilisation de solvant et d'une opération supplémentaire de dissolution. Afin de pallier à ces inconvénients, une nouvelle méthode a émergé : l'hydrofracturation.

Elle repose sur la création de fibres îles-en-mer par le procédé spunbond suivi d'une étape de fracturation de l'élément mer et d'une étape de séparation de l'élément mer et les îles à de jets d'eau haute pression du procédé d'hydroliage. Aujourd'hui, le nombre d'îles peut être compris entre 37 et 1200 (Brunnschweiler et al. 2006; Hedge et al. 2004; Hills 2016).

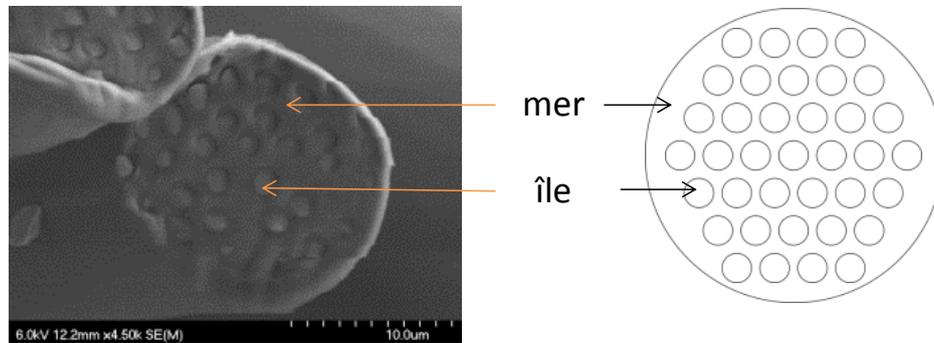


Figure 1-24- Schéma d'une fibre îles-en-mer

### 1.3.4.2 Principe d'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer afin d'obtenir des fibres ultrafines

#### 1.3.4.2.1 Formation des filaments bicomposantes îles-en-mer

La formation des filaments bicomposants îles-en-mer repose sur une filière bicomposante Hills©. Deux polymères sont extrudés de manière indépendante puis sont injectés dans une filière. Par un système de plaque de distribution, les flux de polymères sont distribués et divisés jusqu'à former des filaments îles-en-mer.

#### 1.3.4.2.2 Développement d'un média composé de fibres îles-en-mer

Pour créer un voile de fibres îles-en-mer, il y a deux possibilités. La première possibilité consiste à fabriquer les fibres îles-en-mer à partir d'un procédé de filage bicomposant. Puis, après une étape de convertissage qui transforme les filaments en fibres courtes, on forme un voile composé de fibres îles-en-mer à l'aide d'une carte (Brunnschweiler et al. 2006).

La deuxième possibilité est de fabriquer directement un voile composé de filaments îles-en-mer à partir d'un procédé spunbond bicomposant équipé d'une filière adaptée à la création de fibres îles-en-mer.

#### 1.3.4.2.3 Séparation des îles et de la mer

Après la formation du voile spunbond avec des filaments bicomposants îles-en-mer, il faut séparer les îles de la partie mer. Pour cela, deux méthodes sont utilisées, l'une chimique où l'on dissout l'élément mer et l'autre physique où l'on fracture le filament pour séparer l'île et la mer (Figure 1-25).

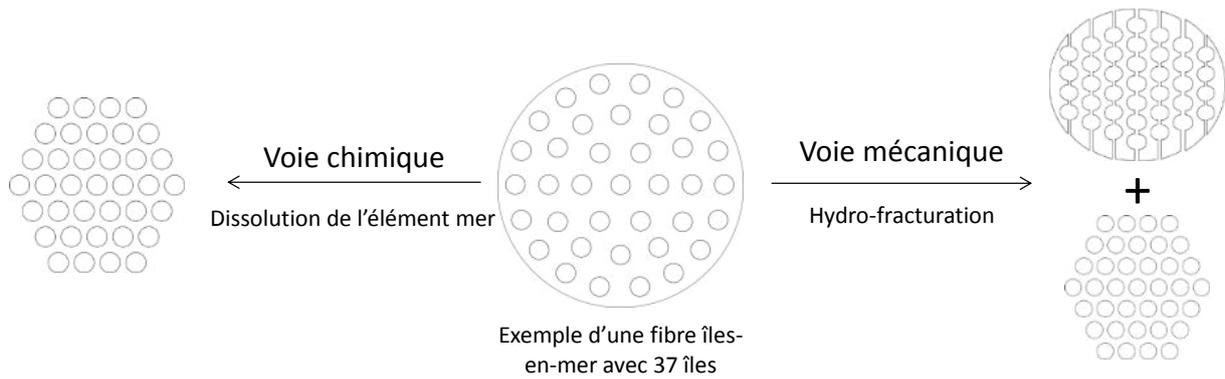


Figure 1-25 – Possibilité d'obtention de fibres ultrafines à partir de fibres bicomposantes îles-en-mer

### Dissolution – voie chimique

La dissolution est une méthode chimique pour dissoudre l'élément mer et ainsi récupérer un voile composé uniquement d'îles.

Le voile spunbond est trempé dans un bain de solvant à concentration et température contrôlées afin de permettre la dissolution. Après une étape de rinçage et de séchage, on obtient un voile composé uniquement d'îles (Wang et al. 2009; Fedorova & Pourdeyhimi 2009). Les polymères adaptés à la dissolution peuvent être solubles dans l'eau comme le PVA (Alcool PolyVinyle) ou l'AQ48 (Polyester sulfuré). D'autres polymères nécessitent un solvant pour être dissous (PA6, PLA...) (B. Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Zhang et al. 2004; Song 2002).

### Fracturation par hydroliage – voie physique

L'autre méthode pour obtenir un voile avec des îles est d'utiliser une méthode physique. Elle peut provenir du procédé d'aiguilletage, où l'impact des aiguilles va générer la rupture de l'élément mer et libérer les îles, mais le procédé le plus souvent utilisé reste l'hydroliage (Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009).

La Figure 1-26 regroupe des images MEB de structures spunbond îles-en-mer fortement fracturées par hydroliage. La Figure 1-26 (a) et (b) montrent respectivement une coupe en section et une image vue de dessus. On peut noter quelques filaments non fracturés sur chacune des images ainsi que toutes les fibrilles qui représentent les îles et la mer fracturée par hydroliage.

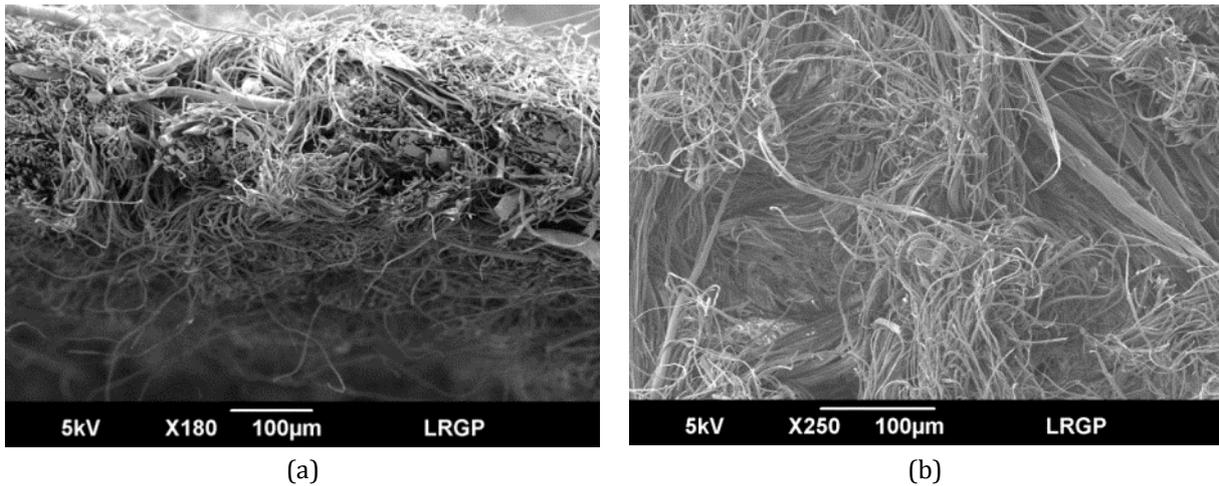


Figure 1-26 -Vue d'une structure spunbond îles-en-mer avec une fracturation par hydroliage importante (a) : coupe en section (b) : vue de dessus

### 1.3.5 AUTRES METHODES.

D'autres méthodes existent pour créer des fibres ultrafines même si elles restent pour la plupart à l'échelle du laboratoire (Nayak et al. 2012).

#### 1.3.5.1 Le Rotor-spinning ou Force-spinning©

Le Rotor-spinning ou le Force-spinning© est une nouvelle méthode de création de fibres ultrafines. Le champ électrique du procédé d'électrospinning est remplacé par la force centrifuge. Un réservoir liquide est placé au centre d'une centrifugeuse munie de petits orifices. En tournant, le polymère est éjecté de la centrifugeuse par les petits orifices, ce qui génère alors des fibres submicroniques (Figure 1-27). Les filaments obtenus peuvent atteindre un diamètre moyen de 200 nm. Les avantages de ce procédé sont une productivité plus importante, une absence de champ électrique et une absence de solvant (Raghavan et al. 2013; Sarkar et al. 2010; Lozano & Kamalaksha 2009; Lozano & Sarkar 2009).

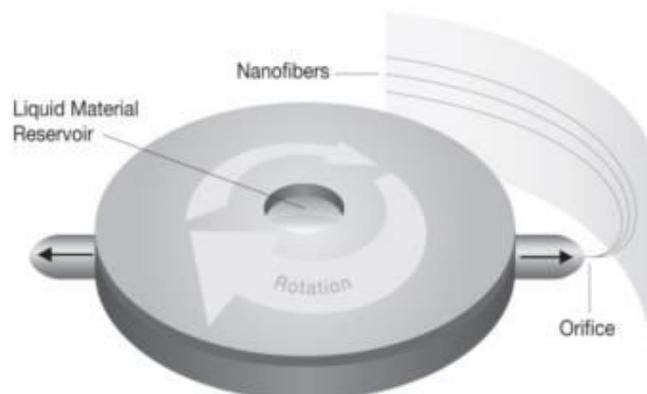


Figure 1-27 - Mécanisme de formation des fibres via le procédé force-spinning (Raghavan et al. 2013)

### 1.3.5.2 Template synthesis

Le principe de la méthode « Template synthesis » repose sur une membrane qui sert de moule pour la création des fibres ultrafines. Tout d'abord, on ajoute des molécules ou particules à la surface d'une membrane composée de pores submicroniques par différentes méthodes (oxydation, injection...). Puis, en retirant la membrane par dissolution, on obtient des fibres submicroniques (Figure 1-28) (Nayak et al. 2012; Li et al. 2006). Cette méthode permet d'obtenir des diamètres moyens de 100 nm monodisperses, mais elle est peu productive et nécessite des membranes calibrées.

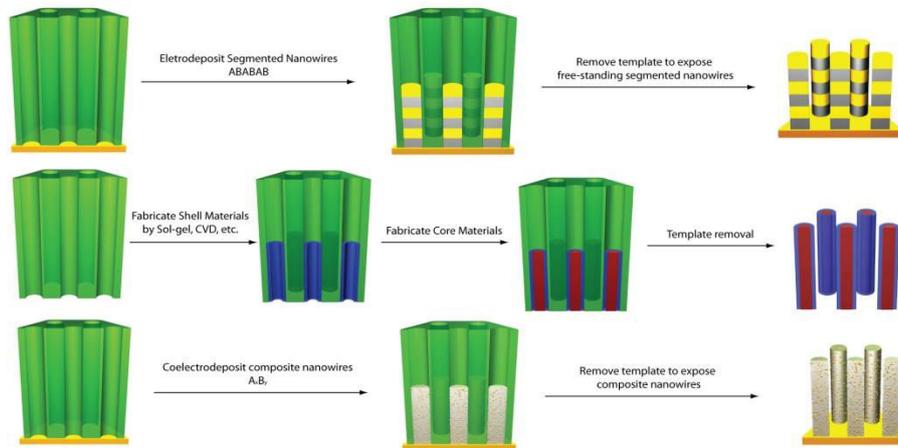


Figure 1-28 – Schéma de formation de fibres ultrafines par la méthode Template synthesis (Liu 2016)

### 1.3.5.3 Self-assembly

La méthode Self-assembly s'appuie sur la capacité de certaines molécules à pouvoir s'assembler entre elles sous certaines conditions. En créant les bonnes conditions, les molécules se regroupent sous forme de fibres (Nayak et al. 2012). La Figure 1-29 illustre un exemple de fabrication (Jun et al. 2006). Cette méthode présente l'avantage de pouvoir réaliser des fibres entre 7 et 100 nm mais reste encore en développement et n'est possible qu'avec certains types de molécules.

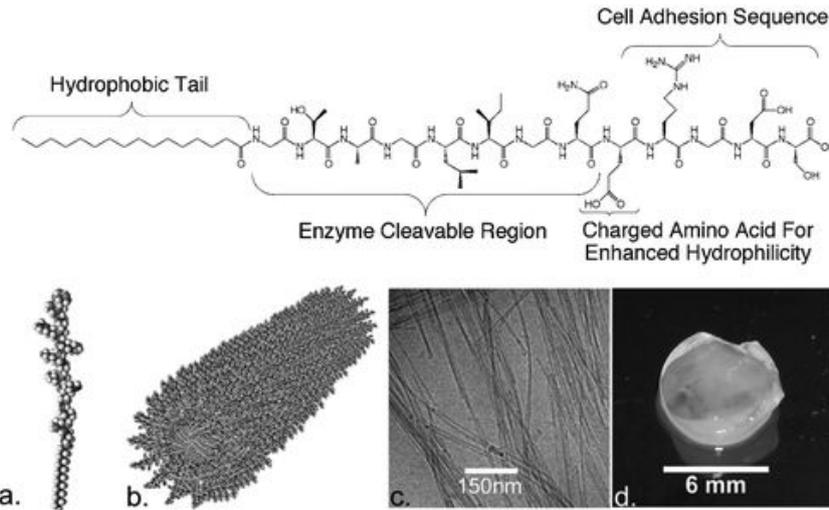


Figure 1-29 – Schéma de formation de fibres ultrafines par la méthode Self-assembly (Jun et al. 2006)

### 1.3.5.4 Séparation de phase

La méthode de séparation de phase consiste à mélanger et à laisser reposer un mélange de polymère et de solvant afin d'obtenir un gel polymère/solvant. Pour obtenir une matrice de filament, il suffit alors de dissoudre le solvant (Figure 1-30). Cette méthode permet de produire des filaments entre 50 et 500 nm, mais il existe peu de polymères adaptés. De plus, cette méthode est encore en développement (Nayak et al. 2012; Ma & Zhang 1999).

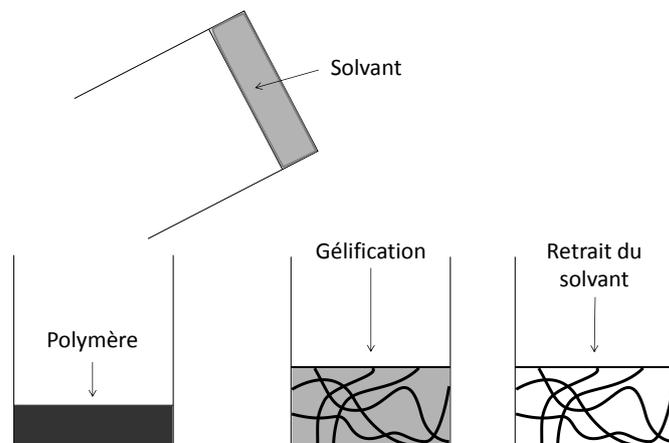


Figure 1-30 – Schéma de formation de fibres ultrafines par séparation de phases

### 1.3.5.5 Drawing

La méthode « drawing » se fait en plusieurs étapes. Tout d'abord, une goutte de polymère (associé à un solvant, ou pas) est déposée sur une plaque de silicium. Puis, une micropipette est mise en contact avec la goutte avant de s'éloigner de la pipette. Le mouvement de retrait a pour effet de créer un filament (Figure 1-31). En répétant l'opération plusieurs fois, on peut créer un faisceau de fibres (Nayak et al. 2012). La technique permet d'obtenir des filaments entre 2 et 1000 nm, mais elle est longue et peu précise.



Figure 1-31 – Schéma de formation de fibres ultrafines par la méthode Drawing

### 1.3.6 COMPARAISON DES METHODES

Dans un contexte de production industrielle, les principaux critères pour sélectionner une méthode de fabrication de médias fibreux à fibres submicroniques sont le nombre de polymères utilisables, le diamètre des filaments, la productivité, la qualité des médias fibreux et le coût. Pour cela, nous nous concentrerons sur l'électrospinning, le « nano » meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer fracturées par hydroliage. En effet, à l'exception de ces trois méthodes, les méthodes à savoir le « template synthesis », « drawing », « self-assembly », « phase separation » restent à l'échelle du laboratoire.

Le rotor-spinning ne sera pas abordé dans les comparaisons, car ses avantages et inconvénients sont proches de l'électrospinning et que la technologie, bien que prometteuse, est encore en développement.

Les médias à fibre de verre sont intéressants, cependant la tendance actuelle est de les remplacer par des médias synthétiques qui sont plus versatiles et ne présentent pas de toxicité pour l'homme (Hutten 2015).

#### Le nombre de polymères

Le nombre de polymères utilisable est un critère important, car une grande diversité de polymères permet un nombre d'applications plus important.

L'électrospinning permet d'utiliser un grand nombre de polymères, notamment en voie solvant où le polymère est mélangé à un solvant. La méthode « nano » meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer imposent un certain nombre de contraintes sur les polymères (thermoplastique, filable), ce qui réduit le nombre de polymères utilisables. Mais, les polymères disponibles à savoir les polyoléfines, les polyester ou encore les polyamides permettent de répondre à de nombreuses applications.

#### Le diamètre moyen des filaments

Toutes les méthodes présentées permettent l'obtention de fibres submicroniques, néanmoins l'électrospinning permet d'obtenir les fibres les plus fines, entre 40 et 500 nm.

### Productivité

La productivité peut être définie comme la quantité de médias fibreux produit (en masse, en surface ou en longueur) par unité de temps.

L'électrospinning présente une productivité plus importante que les méthodes à l'échelle du laboratoire, mais elle reste faible. En effet, malgré l'amélioration des méthodes pour augmenter la productivité, l'électrospinning fonctionne à faible vitesse et sur de faibles largeurs. Au contraire, le « nano » meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer fracturées par hydroliage peuvent fonctionner à des vitesses élevées de production et sur des largeurs de plusieurs mètres (Nayak et al. 2012; Bhat & Malkan 2006).

De plus, les technologies « nano » meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer hydrofracturées peuvent être insérées dans une ligne de production en continu alors que l'opération d'électrospinning doit être réalisée de manière discontinue. En effet, elle fonctionne sur des vitesses plus faibles et des largeurs moins importantes que les étapes en aval.

Afin d'augmenter la productivité, la manipulation du média fibreux doit être simple. Lorsque les fibres submicroniques se déposent sur un support, les fibres doivent y adhérer afin de faciliter la manipulation du média fibreux (Brunnschweiler et al. 2006). Dans le cas de l'électrospinning, l'adhésion entre les fibres et le support est faible, car les polymères des fibres et du support sont différents. Ainsi, la manipulation des médias fibreux d'électrospinning doit être minutieuse sous peine d'endommager le média fibreux. Au contraire, lorsque l'on associe des fibres « nano » meltblown à un support, l'adhésion est plus importante, car le même polymère est utilisé pour les fibres et le support.

### Coût

L'installation d'un procédé d'électrospinning nécessite d'investir dans l'ensemble des éléments du procédé. Par contre, les éléments principaux des machines « nano » meltblown ou de fabrication de fibres bicomposantes îles-en-mer sont déjà présentes dans l'industrie. Ainsi, faire évoluer les procédés déjà existants au sein d'une entreprise afin de produire des fibres submicroniques est plus économique pour une entreprise que d'intégrer une nouvelle technologie.

### Qualité du voile

La qualité du voile correspond à l'uniformité du média fibreux c'est-à-dire l'uniformité de répartition des fibres au sein d'un échantillon (variation locale d'épaisseur, de compacité ou de masse surfacique) et la distribution des diamètres des fibres. Cette problématique concerne tous les médias fibreux.

Le procédé d'électrospinning dépose des fibres submicroniques sur un support sur une faible épaisseur difficilement mesurable. Par conséquent, il est difficile de savoir si les fibres se sont réparties de manière homogène.

Pour les médias fibreux "nano" meltblown, l'observation de la répartition de matière montre que l'épaisseur, la compacité et la masse surfacique varient localement. De plus, les médias fibreux meltblown possèdent une dispersion (ou distribution) de diamètre de filaments qui peut être importante. Ces différentes hétérogénéités affectent les propriétés de filtration.

Tableau 1-13 - Comparaison des différentes techniques de fabrication de fibres submicroniques

	Productivité	Gamme de diamètres typique	Remarques
<b>Electrospinning</b>	Faible productivité	40 à 500 nm	- Nombre important de polymères - Nécessite un support
<b>Média à base de fibres de verre</b>	Productivité importante	800 à 1200 nm	- Fibre courte - Potentiellement un risque pour la santé - Peu versatile
<b>Meltblown avec filière nano</b>	Productivité importante	300 à 1000 nm	- Technologie présente dans l'industrie
<b>Spunbond îles-en-mer</b>	Productivité importante	300 à 1300 nm	- Nombre de polymères restreint - Technologie présente dans l'industrie
<b>Rotor-spinning</b>	Productivité importante	255 à 2000 nm	- Procédé en développement
<b>Template synthesis</b>	Échelle laboratoire (Faible productivité)	100 à 400 nm	- Procédé complexe - Diamètre des filaments ajustables par la forme du moule
<b>Drawing</b>	Échelle laboratoire (Faible productivité)	2 à 1000 nm	- Mauvaise uniformité
<b>Self assembly</b>	Échelle laboratoire (Faible productivité)	7 à 100 nm	- Procédé complexe
<b>Phase separation</b>	Échelle laboratoire (Faible productivité)	50 à 500 nm	- Requier peu de matériel - Peu de polymères adaptés

L'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer fracturées par hydroliage nécessite la combinaison de plusieurs procédés qui induisent différentes hétérogénéités. Le produit final présente alors des variations locales d'épaisseur, de compacité et de masse surfacique. De plus, après la fracturation des filaments îles-en-mer, l'élément mer reste dans la structure. L'ensemble n'est plus formé de fibres parfaitement cylindriques, mais d'un mélange de fibres cylindriques (îles) et résidus de mer. Ces hétérogénéités peuvent induire des comportements en filtration différents.

En résumé, la comparaison des différentes méthodes montre qu'à l'échelle industrielle, l'électrospinning permet d'utiliser de nombreux polymères, d'obtenir des fibres très fines comparées au « nano » meltblown et à l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer fracturées par hydroliage. Cependant, le « nano » meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer fracturées par hydroliage permettent de faire évoluer les procédés déjà existants à l'échelle industrielle tout en ayant une productivité plus importante que l'électrospinning.

Le Tableau 1-13 résume les avantages et les inconvénients des différentes techniques de fabrication des fibres submicroniques.

## 1.4 CONCLUSION

À travers ce chapitre, nous avons abordé les généralités sur les médias fibreux, expliqué leurs principales caractéristiques et exposé certaines de leurs applications en filtration de l'air. Puis, nous avons présenté la théorie de la filtration de l'air en détaillant les mécanismes et les modèles de perméabilité et d'efficacité. Ensuite, nous avons montré l'intérêt théorique des fibres submicroniques en filtration. Enfin, nous avons présenté et comparé les différentes méthodes et technologies permettant de fabriquer des médias fibreux à fibres submicroniques.

En définitive, les médias fibreux à fibres submicroniques revêtent un potentiel pour la filtration de l'air. Parmi les technologies permettant de fabriquer des médias à fibres submicroniques, on retrouve, le procédé d'électrospinning qui permet d'utiliser de nombreux polymères et d'obtenir des fibres submicroniques, mais présente certains désavantages : une faible productivité ou une faible adhésion entre les fibres et le support.

Au contraire, les technologies « nano » meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer spunbond fracturées par hydroliage permettent d'avoir une productivité plus importante, de pouvoir être associées à d'autres procédés sur une même ligne de production. De plus, les principales infrastructures des technologies "nano" meltblown et d'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer fracturées par hydroliage sont déjà présentes dans le monde industriel. Être capable de faire évoluer les procédés afin de produire des fibres submicroniques est plus économique que d'investir dans un nouveau procédé.

## Chapitre 2: ÉTUDE ET DEVELOPPEMENT DE MEDIA A FIBRES ULTRAFINES A PARTIR DU PROCEDE «NANO» MELTBLOWN

L'état de l'art des médias fibreux en filtration de l'air montre l'intérêt d'utiliser des fibres ultrafines. Dans cette partie, nous allons étudier et développer des médias à fibres ultrafines à partir du procédé « nano » meltblown. Il se fonde sur le procédé meltblown « classique » auquel est associée une filière dite « nano » dédiée à la fabrication de fibres ultrafines. Cette nouvelle filière se différencie par sa géométrie. Par exemple, le diamètre des capillaires est plus petit et leur longueur est plus importante. Ainsi, bien que le procédé meltblown classique ait été étudié depuis plusieurs décennies, les phénomènes qui ont lieu au sein du procédé « nano » meltblown peuvent être différents. L'objectif est donc de déterminer la stratégie optimale pour produire les filaments les plus fins possible. En plus d'obtenir des fibres ultrafines, il est important que le média soit de qualité acceptable c'est-à-dire posséder une hétérogénéité limitée. L'hétérogénéité peut être de deux types. Le premier type correspond à la polydispersion du diamètre des filaments tandis que le deuxième type se rapporte à une hétérogénéité de répartition spatiales filaments dans le voile (aspect nuageux du voile). Dans un premier temps, nous nous focaliserons sur le premier type d'hétérogénéité c'est-à-dire la polydispersion du diamètre des filaments. Dans un deuxième temps, nous analyserons l'hétérogénéité de répartition de matière. En parallèle de l'étude du diamètre des filaments, nous étudierons l'évolution de la compacité selon les paramètres procédés, car bien qu'ils soient moins influents que le diamètre des filaments, la compacité est une caractéristique importante pour évaluer la perte de charge et l'efficacité.

En résumé, nous allons étudier les relations entre les paramètres du procédé « nano » meltblown et le diamètre moyen des filaments, la polydispersion des diamètres de filaments et la compacité. Pour cela, nous commencerons par une description approfondie du procédé « nano » meltblown qui détaillera les paramètres clés et les phénomènes mis en jeu lors du procédé meltblown classique et « nano » meltblown. Ensuite, nous étudierons l'influence de certains paramètres sur le diamètre moyen des filaments, la distribution des diamètres de filaments et la compacité. À cet égard, nous étudierons d'une part les paramètres du procédé en ligne tels que le débit de polymère par capillaire de la filière, le débit d'air primaire, la distance entre la filière et le collecteur (Die-To-Collector Distance = DCD), la température de filage et d'autre part un paramètre lié à la matière première qui est la viscosité du polymère à l'état fondu.

## 2.1 MATERIELS ET METHODES DE CARACTERISATION

### 2.1.1 DESCRIPTION DETAILLÉE DU PROCÉDE MELTBLOWN DU CETI EN CONFIGURATION « NANO »

Comme mentionné dans la partie 1.3.3.2, le procédé « nano » meltblown peut être divisé en plusieurs étapes : l'étape d'extrusion, l'étape de filage, l'étape d'étirage à chaud, l'étape de refroidissement et la formation du voile (Bhat & Malkan 2006). Pour rappel, la Figure 2-1 représente le schéma du procédé meltblown du CETI.

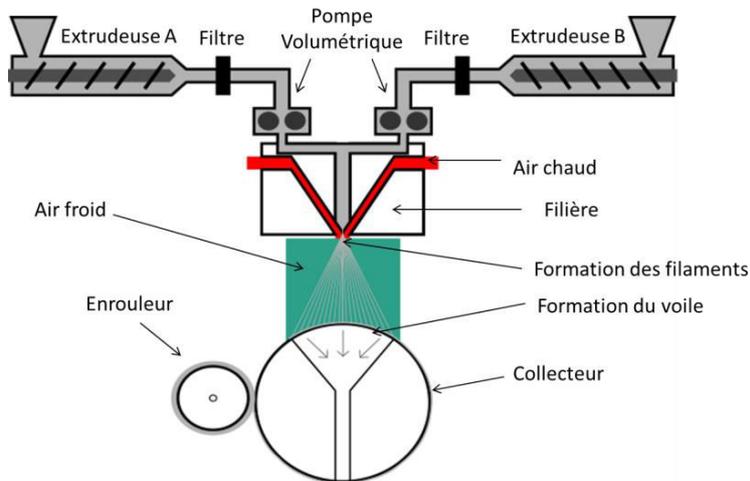


Figure 2-1- Schéma d'un procédé meltblown bicomposant

La première étape est l'extrusion du polymère. L'objectif consiste à faire fondre les granules de polymères pour obtenir un polymère à l'état liquide qui peut être filé. Pour cela, une extrudeuse à vis est le plus souvent utilisée. Elle se compose d'un fourreau cylindrique réglé thermiquement à l'aide de collier chauffant dans lequel une vis est mise en rotation. À l'intérieur de l'extrudeuse, on distingue 3 zones : alimentation, compression et pompage. Dans la zone d'alimentation, les granules de polymères sont introduits à l'aide d'une trémie au sein de l'extrudeuse. Ils sont ensuite acheminés vers la zone de compression. Pendant ce trajet, les granules commencent à ramollir. Dans la zone de compression, le polymère passe de l'état solide à l'état fondu par la montée en température et les forces de cisaillements exercées par la vis avant d'atteindre la zone de pompage. Dans la zone de pompage, le polymère fondu est mélangé, homogénéisé en température et mis sous pression (Harold et al. 2013).

Après cette étape, le polymère est convoyé jusqu'à la filière à l'aide de pompes volumétriques. Le réglage du débit de polymère se fait alors par le réglage de la vitesse de rotation des pompes volumétriques (Bhat & Malkan 2006).

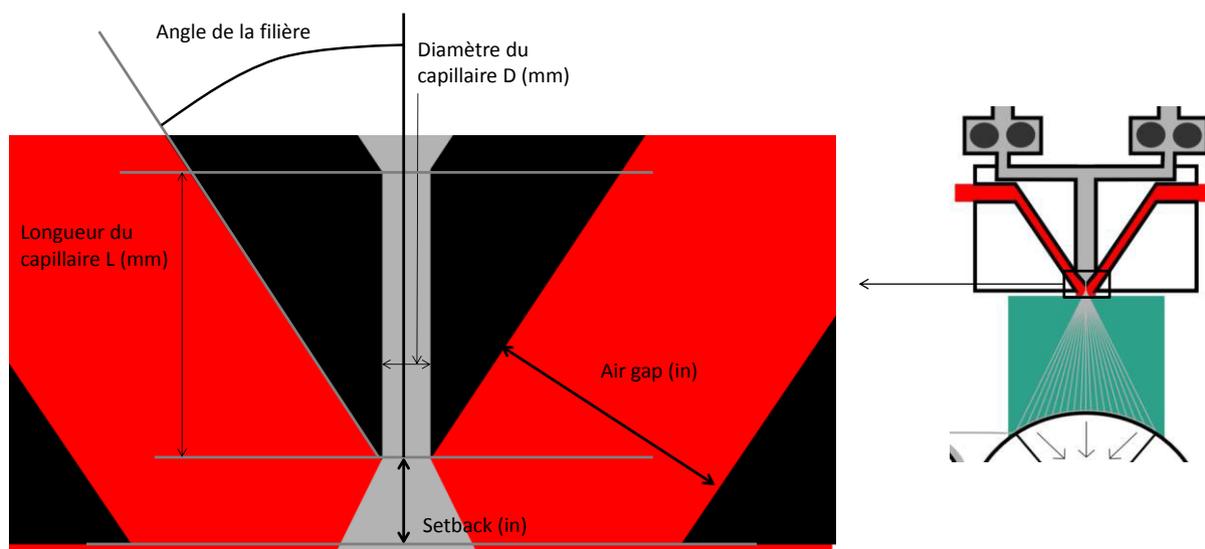


Figure 2-2 – Schéma détaillé d'une filière meltblown

Une fois le polymère fondu entré dans la filière, il est distribué uniformément dans toute la filière à l'aide de plaques de distribution. Ces plaques de distribution ont également pour objet de positionner deux polymères provenant des extrudeuses soit en association côte-à-côte, soit en association noyau-écorce. Le polymère fondu sous pression sort de la filière par des capillaires formant les filaments. De part et d'autre du capillaire, de l'air chaud soufflé à haute vitesse (nommé air primaire) étire les filaments (Bhat & Malkan 2006), comme illustré à la Figure 2-2. Cette figure représente une vue en coupe de la filière meltblown. Lors de cette étape, un phénomène de gonflement du filament en sortie de filière parfois appelé « die swell » peut apparaître. En plus de ce phénomène, le diamètre de sortie du filament est présenté comme instable. Par exemple, Beard et al., 2007, montrent que le diamètre varie très rapidement, ce qui peut parfois provoquer la rupture de ce même filament. Cela est à l'origine de la polydispersion des diamètres de filaments meltblown.

Ensuite, l'étirage est réalisé par l'air chaud qui est soufflé à haute vitesse qui accélère les filaments en sortie de filière. Lors de l'étirage, les filaments refroidissent et cristallisent tout en étant projeté sur un collecteur aspirant où se forme le média (Bhat & Malkan 2006).

Nos études ont été réalisées sur un procédé meltblown Hills© pilote bicomposant donnant des voiles de 50 cm de large (Figure 2-1). Il est composé de deux extrudeuses, ce qui permet de créer des fibres bicomposantes. Pour nos études, le procédé a été utilisé en configuration monocomposante, c'est-à-dire en utilisant le même polymère dans chacune des extrudeuses. La machine est équipée d'une filière « nano » composée d'une unique rangée de capillaires de 19,88 pouces (50,5 cm) avec une densité de capillaires de 100 capillaires par pouce (39 capillaires par cm) et des diamètres de capillaires de 0,125 mm. L'air gap et le set back ont été fixés à 0,254 mm et 0,99 mm respectivement.

## 2.1.2 PARAMETRES D'UNE FILIERE « NANO » MELTBLOWN

### 2.1.2.1 Capillaires : géométrie et densité linéaire

#### 2.1.2.1.1 La géométrie des capillaires

Un capillaire correspond à un orifice circulaire par lequel s'écoule le polymère en sortie de filière, il se caractérise par un diamètre  $D$  et une longueur  $L$  (Figure 2-2).

La diminution du diamètre des capillaires  $D$  accompagne la réduction du débit de polymères et permet notamment de réduire la distance entre deux capillaires et donc d'augmenter la densité linéaire de capillaires. Cela conduit à fabriquer un voile à densité de filament plus importante ce qui améliore l'uniformité de répartition des filaments dans le voile (Dutton 2008; Bhat & Malkan 2006).

Une longueur de capillaire  $L$  importante induit un temps de séjour plus long du polymère dans le capillaire, ce qui permet de générer un écoulement de polymère plus uniforme et de réduire le phénomène de gonflement et d'instabilité en sortie de filière (Dutton 2008; Bhat & Malkan 2006).

Le ratio  $L/D$  correspond au rapport entre la longueur et le diamètre du capillaire par lequel s'écoule le polymère en sortie de filière. Hassan *et al.*, 2013, ont utilisé trois filières avec des ratios  $L/D$  différents (30, 50 et 200). Selon eux, un ratio  $L/D$  important implique une résistance mécanique plus importante des capillaires aux pressions internes de la filière qui croissent lorsque le débit de polymère diminue. Cela permet donc de réduire le débit de polymère. Par exemple, Hassan *et al.* atteignent des débits de polymère de 0,214, 0,0125 et 0,0022 g/min/capillaire pour respectivement les filières avec un ratio de  $L/D$  de 30, 50 et 200.

Une filière « nano » se caractérise par des capillaires avec un diamètre de capillaires plus petit que pour une filière « classique ». Par exemple, Hammonds *et al.*, 2014, utilise une filière « nano » et « classique » avec respectivement un diamètre de capillaire de 25,4  $\mu\text{m}$  et 254  $\mu\text{m}$  pour les filières « classiques ».

Un diamètre de capillaire plus petit accroît les forces de cisaillement qui s'appliquent sur le filament et augmente l'instabilité du diamètre du filament en sortie de filière comme c'est le cas avec les filières "nano". Cependant, les filières « nano » possèdent un ratio  $L/D$  plus important qui permet de limiter cet effet (Dutton 2008; Bhat & Malkan 2006)

#### 2.1.2.1.2 La densité linéaire de capillaire

Généralement, les filières meltblown possèdent une seule rangée de capillaires. La densité linéaire de capillaires dans la filière s'exprime par le nombre de capillaires par pouce (Hole Per Inch - HPI). Ainsi, une filière classique possède une densité de capillaires proche de 36 capillaires par pouce (14 capillaires par cm), une filière dédiée à la production de fibres submicroniques possède une densité de capillaires proche de 100 capillaires par pouce (39 capillaires par cm) (Hassan *et al.* 2013; Hammonds *et al.* 2014).

En effet, pour un même débit de polymère dans la filière, plus le nombre de capillaires sera important et plus le débit par capillaire sera faible. Par ailleurs, il est admis qu'en réduisant le débit de polymère par capillaire, on réduit le diamètre des filaments (Dutton 2008; Bhat & Malkan 2006).

### 2.1.2.2 Géométrie de la filière : angle de soufflage, « air gap » et « set back »

#### 2.1.2.2.1 Angle de soufflage

L'angle de soufflage représente l'angle entre le système de soufflage d'air chaud (les couteaux) et le capillaire (Figure 2-2). Dans la littérature, on identifie plusieurs configurations avec des angles de 90°, 60° et 30°. L'angle influence le régime d'écoulement d'air en sortie de filière. Lorsque l'angle est faible (30°), les filaments ont tendance à vriller par petits groupes créant des paquets de fibres. Le voile ainsi créé présente alors des hétérogénéités de répartition de matière. Au contraire, lorsque l'angle est important (90°), les filaments sont répartis de manière aléatoire et créent des voiles non homogènes. De plus, lorsque l'angle est supérieur à 30° les filaments ont tendance à se casser plus facilement. Un bon compromis semble être un angle de 60° qui limite la cassure des filaments et garantit une bonne répartition des filaments (Bhat & Malkan 2006; Dahiya et al. 2004).

#### 2.1.2.2.2 « Air gap »

L'« air gap » correspond à la largeur de la fente entre les couteaux et la filière par laquelle s'écoule l'air primaire. Pour un même débit d'air, plus l'« air gap » est faible et plus la vitesse de l'air est importante. Une première étude (Haynes 1991) suggère que la modification de la vitesse de l'air par l'« air gap » est négligeable par rapport à la modification du débit d'air. Ainsi, modifier l'« air gap » ne modifie pas les filaments obtenus. Cependant, une étude plus récente (Liu et al. 2009) montre le contraire : la diminution de l'« air gap » de moitié (0,6 à 0,3 mm) réduit le diamètre des filaments de 16 µm à 4 µm environ. Il se peut que l'étude de Liu et al. ait été réalisée avec une filière meltblown plus récente pour laquelle l'« air gap » modifie significativement la vitesse de l'air par rapport aux débits d'air. Par principe physique, pour un même débit d'air, lorsque l'« air gap » est divisé par deux, la vitesse augmente deux fois plus ce qui crée un étirage plus important et donc des filaments plus fins. L'« air gap » permet en fait de régler une gamme de vitesse d'air pour une plage de débits donnés.

Dans le cas des filières « nano », l'air gap est plus petit (par exemple, 0,254 mm au lieu de 1,52 mm). Ainsi, pour un même débit d'air primaire, la vitesse d'air sera plus importante avec une filière « nano » que « classique ». Cela implique donc un étirage plus important possible dans le cas d'une filière « nano ». Cependant, les limites de cette hypothèse restent à vérifier.

#### 2.1.2.2.3 « Set back »

Le « set back » correspond à la distance entre l'extrémité du capillaire et la sortie de la filière (face intérieure des couteaux). C'est dans cette zone que le polymère filé et l'air primaire sont mis en contact. Lorsque l'extrémité du capillaire est à l'extérieur de la filière c'est-à-dire un "set back" inférieur à 0, les turbulences sont moins importantes, mais la vitesse du filament est plus faible (Krutka et al. 2004).

### 2.1.3 PRINCIPAUX PARAMETRES ETUDIÉS DU PROCEDE MELTBLOWN

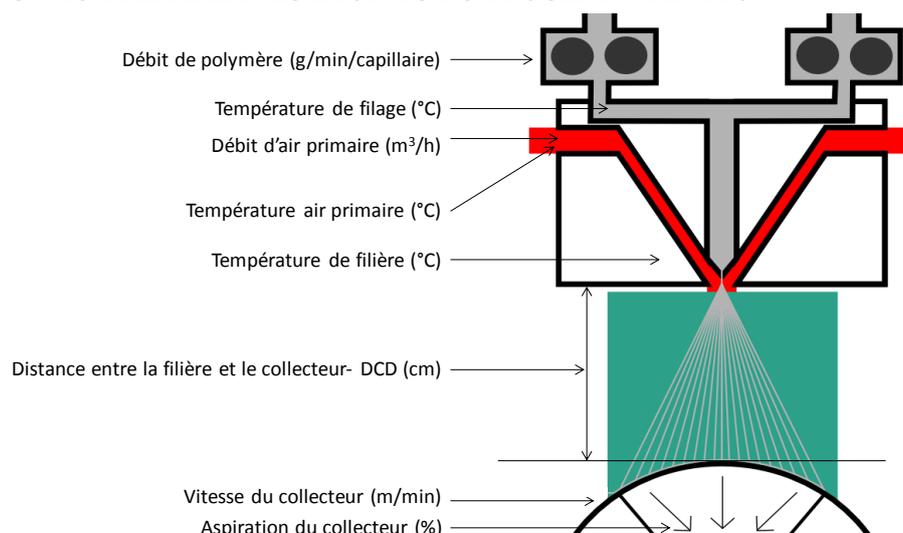


Figure 2-3 – Principaux paramètres étudiés du procédé meltblown

#### 2.1.3.1 Débit de polymère

Le débit de polymère désigne la quantité de matière filée par unité de temps. Il est le plus souvent exprimé en fonction du nombre de capillaires ou de trous de la filière. La diminution du débit de polymères permet de réduire le diamètre de filament (Hassan et al. 2013; Chen et al. 2005; Marla et al. 2009; Bo 2012; Bansal & Shambaugh 1998) ainsi que la masse surfacique (Bhat & Malkan 2006).

Le débit de polymères par capillaire influe directement sur les contraintes subies par le polymère en sortie de filière ainsi il peut jouer un rôle dans l'instabilité du diamètre des filaments et peut influencer la polydispersion des diamètres de filaments (Bear et al. 2007).

L'utilisation d'une filière « nano » s'accompagne d'une réduction significative du débit de polymère et par extension le diamètre des filaments. Hassan et al., 2013, et Hammonds et al., 2014, atteignent des diamètres de filaments inférieurs à 1  $\mu\text{m}$  en utilisant des débits de polymères par capillaire extrêmement faibles (respectivement 0,025 et 0,0022 g/min/capillaire).

#### 2.1.3.2 Température de filage et de la filière

La température de filage représente la température du filament en sortie de filière. La température de filière correspond généralement à la température de filage. Les températures de filage sont notamment différentes dans le cas de l'association de deux polymères en mode meltblown bicomposant. Pour des raisons techniques, les études se focalisent sur l'influence de la température de la filière plutôt que sur la température de filage. La température de filage doit être suffisamment importante pour qu'il soit fluide et donc filable, mais suffisamment faible pour éviter toute dégradation du polymère (Bhat & Malkan 2006). Les études montrent aussi qu'une augmentation de la température de filage ou de la filière diminue le diamètre des filaments.

En effet, une température importante signifie un polymère plus fluide (moins visqueux). Les filaments produits s'étirent alors davantage d'où l'obtention de filaments plus fins (Bo 2012; Bresee & Qureshi 2006; Lee & Wadsworth 1990; Choi et al. 1988; Bansal & Shambaugh 1998).

### *2.1.3.3 Température et vitesse de l'air primaire*

#### **2.1.3.3.1 Température de l'air primaire**

La température de l'air primaire correspond à la température de l'air soufflé en sortie de filière. La chaleur fournie par l'air permet de maintenir les filaments dans un état fluide plus longtemps garantissant un étirage important. Selon les polymères, les tendances peuvent être différentes.

Dans le cas du PLA, une augmentation de la température augmente le diamètre des filaments puisque les polymères tendent à se coller entre eux créant un diamètre de filament plus important (Liu et al. 2009). Dans le cas du PP, Bo, 2013, note une diminution du diamètre des filaments lorsque la température de l'air augmente contrairement à Bansal et Shambaugh, 1998, qui observent peu de différences.

#### **2.1.3.3.2 Vitesse de l'air primaire**

La vitesse de l'air primaire dépend du débit d'air et de l'« air gap », et constitue la principale source d'étirage des filaments. En effet, l'air soufflé accélère les filaments réduisant le diamètre des filaments. Cette tendance est observée dans de nombreuses études (Hammonds et al. 2014; Milligan et al. 1992; Bresee et al. 2005; Han et al. 2013; Bresee & Qureshi 2002; Chen et al. 2005; Lewandowski et al. 2007; Marla et al. 2009; Choi et al. 1988; Bo 2012; Bansal & Shambaugh 1998).

Néanmoins, à partir d'une certaine vitesse d'air primaire, les filaments se brisent et peuvent être éjectés de la structure : c'est le phénomène de « fly ». (Bresee & Qureshi 2002). Ce phénomène limite le diamètre minimum atteignable dans certains cas (Hassan et al. 2013).

Bresee et Qureshi, 2006, suggèrent que l'augmentation de la vitesse de l'air primaire implique une distribution de diamètre plus importante, car les turbulences augmentent lorsque la vitesse d'air primaire est trop importante.

Dans le cas d'une filière « nano » meltblown, Hammonds et al., 2014 remarquent une faible influence de la vitesse de l'air sur le diamètre des filaments. Ils expliquent ce phénomène par le faible diamètre des filaments qui implique un refroidissement rapide et donc un étirage maximum qui est atteint rapidement peu importe les conditions des procédés.

### *2.1.3.4 Distance entre capillaire et collecteur (DCD)*

Souvent nommée DCD par raccourci, ce paramètre correspond à la distance entre la filière et le collecteur (Die-to-Collector Distance). Pendant ce trajet les filaments s'étirent et s'entremêlent tout en refroidissant et cristallisant.

A priori, l'augmentation de la DCD suggère une zone d'étirage plus longue ce qui pourrait être favorable à une réduction du diamètre. Cependant, de nombreuses études montrent que l'étirage dû à l'accélération a lieu entre 0 et 6 cm de la filière. Ainsi augmenter la DCD au-delà de 6 cm ne permet pas de diminuer significativement le diamètre des filaments (Bansal & Shambaugh 1998; Chen et al. 2005; Marla et al. 2009; Lee & Wadsworth 1990; Hammonds et al. 2014). Toutefois, pour des cas où les filaments ont un diamètre supérieur à 6  $\mu\text{m}$ , l'augmentation de DCD permet de réduire le diamètre des filaments jusqu'à 6  $\mu\text{m}$  (Bresee & Qureshi 2006; Bresee & Ko 2003; Bo 2012).

Dans le cas d'une filière « nano » meltblown, Hammonds et al., 2014, n'observent aucune influence de la DCD sur le diamètre des filaments sauf dans un cas. En effet, dans ces travaux, pour un débit d'air primaire faible (0,8 m<sup>3</sup>/min), le diamètre des filaments diminue de 1,7 à 0,5  $\mu\text{m}$  lorsque la DCD augmente de 10 à 50 cm. Cependant, il n'avance pas d'hypothèse pour expliquer ce phénomène.

Enfin, Bresee et Qureshi, 2002, remarquent que l'augmentation de la DCD permet de réduire le phénomène de « fly ». Selon eux, les filaments s'entremêlent davantage lorsque la DCD augmente, ce qui permet d'éviter aux fibres d'être éjectées de la structure.

L'augmentation de la DCD modifie l'organisation des fibres. Ainsi, l'augmentation de la DCD crée une structure avec des pores plus grands (Hammonds et al. 2014; Lee & Wadsworth 1990) et une compacité plus importante qui induisent une perméabilité à l'air plus importante (Bhat & Malkan 2006).

Puis, l'augmentation de la DCD modifie aussi la cristallisation et donc les performances mécaniques (Hammonds et al. 2014).

Les tendances répertoriées à travers les différentes études sont à nuancer par le fait que les relations ne sont pas linéaires ainsi selon le domaine étudié, les résultats peuvent être très différents. De plus, la nature de polymère peut jouer un rôle. Avec une masse moléculaire plus importante, la DCD peut influencer les résultats de manière différente.

### *2.1.3.5 Vitesse du collecteur et taux d'aspiration sous collecteur*

#### **2.1.3.5.1 Vitesse du collecteur**

La vitesse du collecteur correspond à la vitesse du tapis ou du cylindre collecteur en fin de procédé meltblown. Elle permet notamment d'ajuster la masse surfacique de la structure créée. Pour un même débit de polymère, l'augmentation de la vitesse du collecteur réduit la masse surfacique de la structure meltblown produite (Bhat & Malkan 2006).

Qureshi, 2001, étudie précisément l'influence du collecteur sur la structure finale. Il montre qu'une zone de turbulence est créée au-dessus du collecteur. L'augmentation de la vitesse modifie alors la répartition des filaments dans la structure. Par exemple, les filaments sont orientés préférentiellement dans le sens machine.

Une étude de Marla et al., 2009, décrit une baisse légère du diamètre du filament lorsque la vitesse du collecteur augmente à des DCD inférieurs à 20 cm.

### **2.1.3.5.2 Aspiration du collecteur**

L'aspiration sous le collecteur permet de répartir et plaquer les fibres sur le collecteur de manière uniforme. Bresee et Qureshi, 2002, montrent en particulier que l'augmentation de l'aspiration diminue le phénomène de « fly ».

## **2.1.4 CHOIX ET PROPRIETES DES POLYMERES UTILISES**

### *2.1.4.1 Nature des polymères*

La nature de polymère désigne l'organisation et la composition des monomères qui forment le polymère. L'étirage, le refroidissement et la cristallisation du polymère pendant l'étape de filage sont liés à la structure, aux interactions et à la distribution des chaînes moléculaires. Par exemple, une distribution restreinte des masses moléculaires permet de réduire l'élasticité des filaments et d'augmenter la résistance des filaments lors de l'étape d'étirage. Au contraire, lorsque la distribution est trop large, les filaments sont plus élastiques et moins résistants, les filaments rentrent alors en résonance provoquant la rupture des filaments. Chaque polymère nécessite donc des réglages adaptés lorsqu'il est utilisé en meltblown (Bhat & Malkan 2006; Harold et al. 2013).

### *2.1.4.2 Viscosité à l'état fondu du polymère*

La viscosité à l'état fondu du polymère constitue une des principales propriétés utilisées pour sélectionner un polymère dans le cadre du procédé meltblown. En effet, cette technologie nécessite des polymères peu visqueux (plus fluides) à l'état fondu que les procédés spunbond ou de filage classique (Dutton 2008; Bhat & Malkan 2006).

Pour évaluer la viscosité à l'état fondu, il existe plusieurs indicateurs comme le Melt Flow Index (MFI), la viscosité relative ou encore la viscosité intrinsèque. Dans le cas du polypropylène (PP), polymère le plus utilisé en procédé meltblown, le MFI est principalement utilisé (Bhat & Malkan 2006). Il est aussi appelé Melt Flow Rate (MFR), Melt Index (MI), indice de fluidité à chaud ou encore grade. Il représente la quantité de matière qui s'écoule d'une filière calibrée par unité de temps à la température de mise en œuvre du polymère sous une contrainte fixée.

Il s'exprime en gramme par 10 min pour une température et une contrainte donnée par la norme ISO-1133:2011. Par exemple, dans le cas du PP, la température est fixée à 230°C pour une contrainte de 2,16 kg.

Depuis les années soixante, la maîtrise des procédés de synthèses a été grandement améliorée ainsi la viscosité à l'état fondu des polypropylènes (PP) a chuté. En utilisant le MFI comme indicateur de la viscosité, le MFI est passé de 12,7 à 1800 g/10 min (Choi et al. 1988; Dutton 2008). En première approche, utiliser les polymères les moins visqueux possible à l'état fondu (MFI élevé) semble intéressant car il permet de réduire le débit de polymère en amont et d'étirer davantage les filaments. Cependant, moins le polymère est visqueux à l'état fondu (MFI élevée) et moins il est résistant mécaniquement. En effet, pour diminuer la viscosité à l'état fondu d'un polymère, les chaînes moléculaires sont réduites au maximum, diminuant les performances mécaniques (Nayak et al. 2013; Bhat & Malkan 2006). Une des conséquences directes est la limitation de l'étirage des filaments.

L'indicateur MFI présente des défauts. Par exemple, les polymères sont des fluides non-newtoniens ; un changement de contrainte de cisaillement induit une modification de la viscosité.

Ainsi, le MFI représente la viscosité à l'état fondu du polymère pour une unique contrainte de cisaillement qui peut être éloignée des contraintes subies par les filaments lors du procédé meltblown. Une mesure de la viscosité à l'aide d'un rhéomètre capillaire permet d'avoir la viscosité du polymère en fonction de la contrainte de cisaillement. Ce type de graphique permet de comparer les polymères entre eux. De plus, l'idéal serait de pouvoir mesurer la viscosité élongationnelle des polymères afin d'évaluer leur comportement lors de l'étape d'étirage. Cependant ces mesures sont difficiles et nécessitent des équipements spécifiques. Ainsi, nous nous limiterons au MFI comme indicateur de la viscosité à l'état fondu.

## 2.1.5 METHODES DE CARACTERISATIONS DES MEDIAS FIBREUX

### 2.1.5.1 Masse surfacique, épaisseur et compacité

Pour mesurer la masse surfacique, 5 échantillons circulaires de 100 cm<sup>2</sup> prélevés aléatoirement à l'aide d'un James Heal ont été pesés sur une balance Sartorius AX224 avec une précision de 0,01 g. Les 5 valeurs ont été moyennées pour déterminer la masse surfacique.

Pour mesurer l'épaisseur, 5 échantillons prélevés aléatoirement ont été placés entre une plaque de métal et un pied presseur de 25 cm<sup>2</sup> exerçant une pression de 0,1 kPa. Après un temps de contact de 10 secondes, la distance entre la plaque et le pied presseur est mesurée. Les 5 valeurs sont alors moyennées pour déterminer l'épaisseur du média.

La compacité est déterminée à partir de la masse volumique du polymère à température ambiante de l'épaisseur et de la masse surfacique selon l'équation (1-1).

### 2.1.5.2 Diamètre moyen des fibres

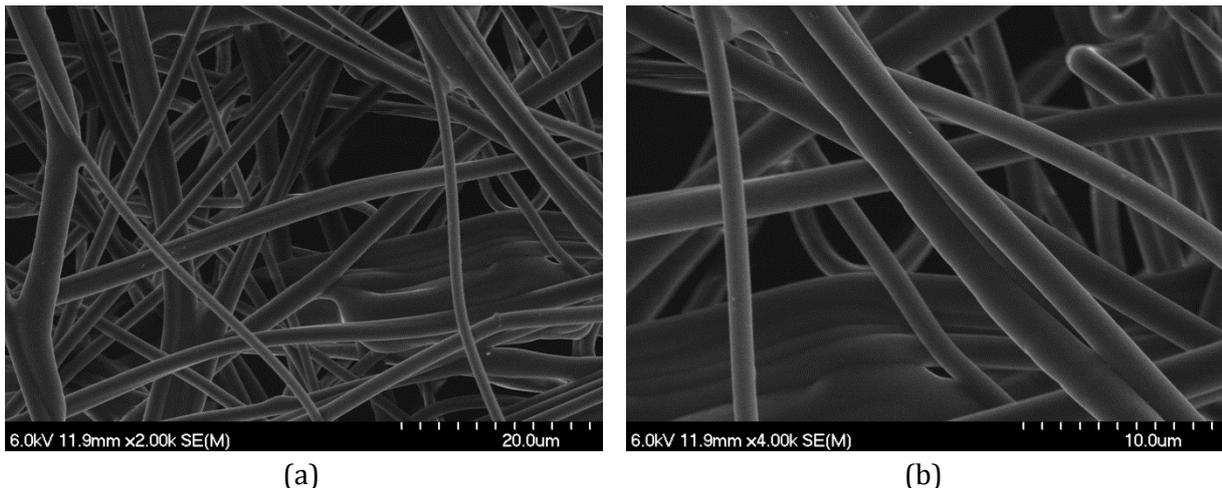


Figure 2-4 – Image MEB d'une même structure meltblown à différents grossissements  
(a) x2000 (b) x4000

Le diamètre moyen des filaments est mesuré à l'aide d'image MEB à un grossissement de 2000 (Figure 2-4-(a)) ou 4000 (Figure 2-4 (b)) selon le diamètre des filaments. Les images MEB ont été réalisées sur un MEB de la marque JSM 6490LV de la société JEOL au LRGP.

Pour chaque échantillon, nous avons réalisé 5 images MEB et mesuré un minimum de 20 diamètres de filament par image avec le logiciel Image J de NIH.

Pour cela, nous avons tracé une diagonale de part et d'autre de l'image puis nous avons mesuré le diamètre de chaque filament en contact avec la diagonale. De cette manière, nous mesurons un minimum de 100 diamètres de filaments par échantillon. Cela nous permet alors d'obtenir la distribution des diamètres de filaments et d'en déduire un diamètre moyen. La Figure 2-5 représente 3 exemples de distribution des diamètres de filaments associés à une image MEB de l'échantillon.

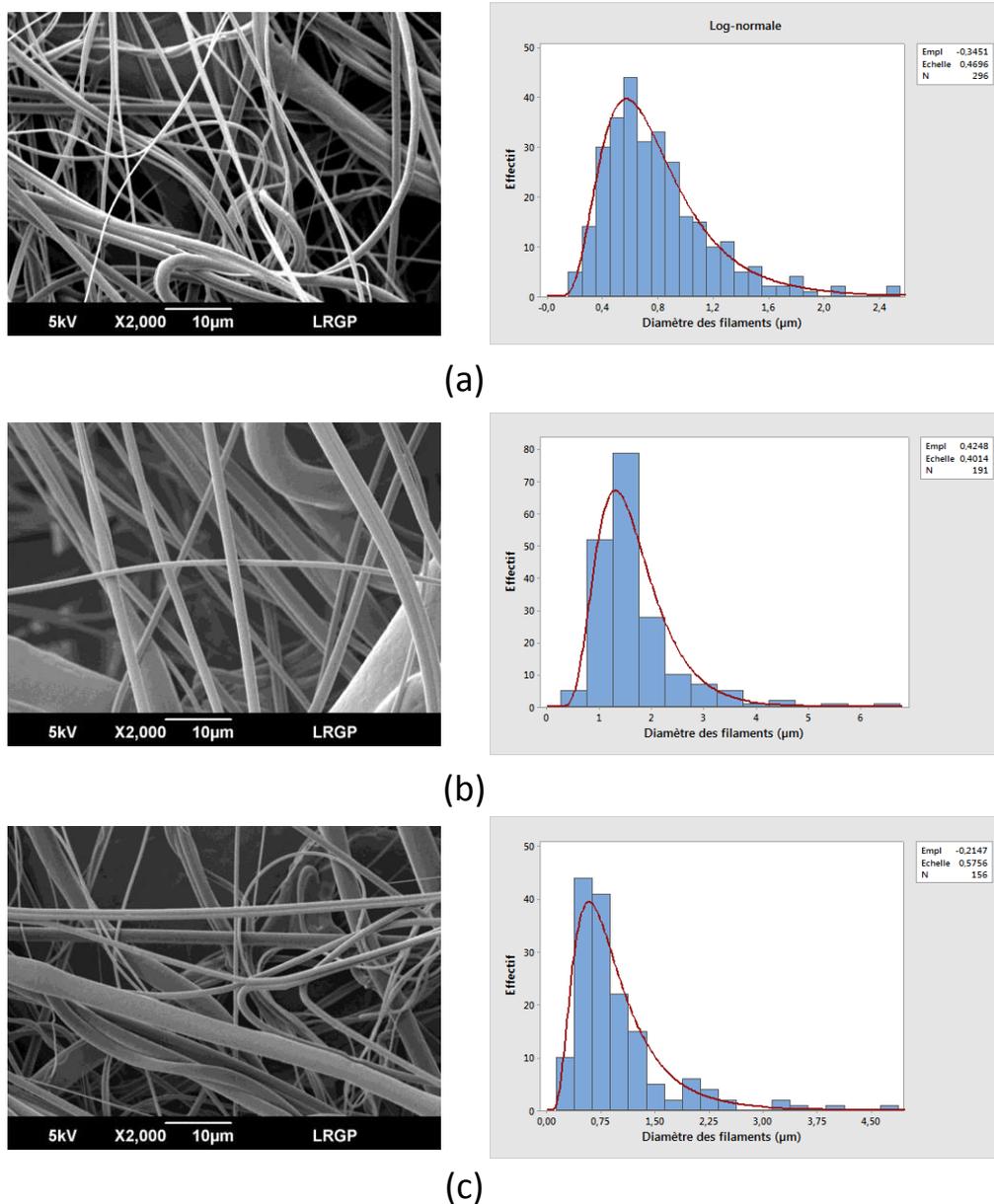


Figure 2-5 – Exemples de distribution de diamètre de filaments pour trois structures meltblown

Pour les 3 cas, on remarque que la distribution n'est pas gaussienne, mais qu'elle possède une queue orientée à droite. Dans ce cas, la moyenne arithmétique et l'écart type ne sont pas représentatifs de la distribution (diamètre moyen et amplitude de la distribution).

Ici, nous leur préférons la médiane  $d_M$  (ou diamètre médian) qui est la valeur qui coupe la distribution en deux parties égales et l'espace interquartile  $IQ$  qui représente l'écart entre le 1<sup>er</sup> quartile (valeur de la série qui sépare les 25% valeurs les plus faibles des autres valeurs plus importantes) et le 3<sup>ème</sup> quartile (la valeur de la série qui sépare les 75% les plus faibles des valeurs plus importantes) pour évaluer respectivement le diamètre moyen et l'amplitude de la distribution. En effet, la médiane  $d_M$  et l'espace interquartile  $IQ$  ne sont pas influencés par le fait que la distribution soit orientée à droite ou à gauche et constituent donc des valeurs plus représentatives. Afin de comparer les échantillons avec des médianes  $d_M$  différentes, nous avons calculé un coefficient de variation  $CV\%$  selon l'équation (2-1). Cet indicateur est souvent utilisé pour comparer l'amplitude de plusieurs distributions de diamètres de filaments (Tan et al. 2010).

$$CV\% = \frac{IQ}{d_M} \quad (2-1)$$

Certains auteurs (Singha et al. 2012; Tan et al. 2010) assimilent la distribution à une loi log normale. Cependant, un certain nombre d'échantillons s'éloigne des lois log-normales comme à la Figure 2-5 (b). Ainsi, nous avons privilégié la médiane  $d_M$  au diamètre moyen géométrique.

## 2.2 ÉTUDE DES PARAMETRES DU PROCEDE MELTBLOWN

### 2.2.1 OBJECTIFS DES ESSAIS

L'objectif est de concevoir des médias « nano » meltblown avec les fibres les plus fines possible. Une des idées les plus simples est de tester toutes les configurations possibles offertes par le procédé meltblown et déterminer alors les conditions permettant d'obtenir des fibres ultrafines. Cependant, cette méthodologie n'est pas applicable au procédé meltblown qui possède beaucoup trop de paramètres (débit de polymères, débit d'air, DCD, température de polymère, vitesse du collecteur...). Expérimenter toutes les configurations nécessiterait un nombre d'expériences et une quantité de temps excessivement élevés.

Une autre possibilité est de sélectionner les paramètres du procédé les plus influents avec le minimum d'expériences ; puis, une fois les paramètres les plus influents identifiés, étudier leurs influences plus précisément avec un plan d'expériences plus accompli. C'est cette méthodologie que nous avons choisie et développée.

Pour cela, nous avons adopté une méthodologie par plan d'expériences qui permet d'étudier l'effet d'un ou plusieurs facteurs (paramètres du procédé) selon plusieurs niveaux (modalités) sur plusieurs réponses (caractéristiques des structures telles que le diamètre moyen des filaments ou la compacité). L'avantage de cette méthodologie est qu'elle minimise à la fois le nombre d'expériences à réaliser et permet d'étudier les interactions entre les facteurs sur une réponse.

### 2.2.2 PLAN D'EXPERIENCES PRINCIPAL PLEX1

Pour la réalisation du plan d'expériences principal (PLEX1), nous avons utilisé un polypropylène (PP) avec une viscosité à l'état fondu intermédiaire (MFI de 1200 g/10 min à 230°C et une contrainte de 2,16 kg). Ses caractéristiques sont résumées dans le Tableau 2-1.

Tableau 2-1 – Caractéristiques polymères meltblown utilisées pour l'étude de l'influence des paramètres en ligne sur les caractéristiques de structures

Polymère	Référence	Fournisseur	Température de fusion (°C)	Melt flow index MFI (g/10 min) à 230°C
PP	Borflow HL512FB	Boréal	158°C	1200

À partir de la revue bibliographique précédente, nous avons sélectionné 4 paramètres procédés en ligne et 3 caractéristiques de structure pour notre étude. Les 4 paramètres procédés en ligne sont le débit de polymères, le débit d'air primaire, la DCD et la température de filage et les 3 caractéristiques de structures sont le diamètre moyen des filaments qui correspond, ici, à la médiane de la distribution des diamètres des filaments, le coefficient de variation de la distribution des diamètres de filaments selon l'équation (2-1) et la compacité du matériau. La Figure 2-6 résume la démarche du plan d'expériences.

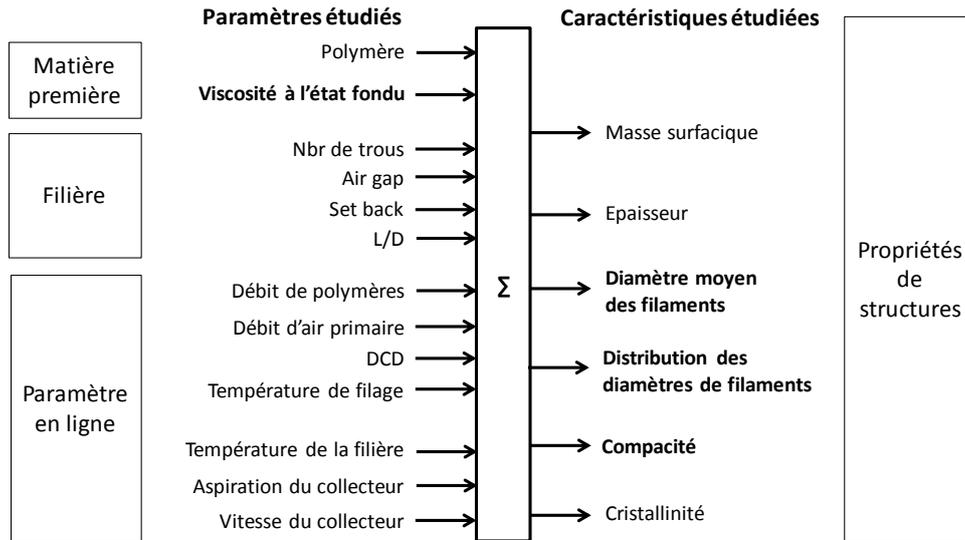


Figure 2-6 – Démarche d'étude de l'influence des paramètres en ligne sur les caractéristiques de structures

D'après la méthodologie des plans d'expériences, le choix des niveaux des facteurs doit couvrir une amplitude la plus grande possible. Ainsi, lorsque cela a été possible, nous avons choisi la valeur maximum et minimum comme pour le débit de polymère, la DCD et la température de filage. Dans le cas de la DCD, nous avons choisi 3 niveaux, car la DCD influence de manière non linéaire, théoriquement, le diamètre des filaments et la compacité.

Pour le débit de polymère, nous avons choisi un débit de polymères minimum et maximum de, respectivement, 0,03 et 0,075 g/min/capillaire qui sont les débits atteints pour la vitesse de pompes volumétriques minimum et maximum avec du polypropylène.

Pour la DCD, nous avons choisi la DCD minimum de 8 cm, une DCD intermédiaire 16 cm et la DCD maximum de 24 cm.

Pour la température de filage, nous avons choisi la température minimum pour que le PP utilisé soit processable à savoir 240°C et une température de 255°C comme température maximum. Au-delà de 255°C, le risque de dégradation devient trop important.

Pour le débit d'air primaire, nous n'avons pas choisi le débit d'air primaire minimum et maximum du procédé, car un débit minimum de 0 m<sup>3</sup>/h n'a pas de sens et un débit d'air primaire de 600 m<sup>3</sup>/h (débit d'air maximum) casse les filaments avant que le média ne se forme. Ainsi, nous avons fixé un débit d'air primaire minimum de 150 m<sup>3</sup>/h (25% du débit d'air maximum) et un débit d'air primaire maximum de 300 m<sup>3</sup>/h (50% du débit d'air maximum). Nous avons privilégié l'utilisation du débit d'air primaire comme indicateur plutôt que la vitesse d'air, car l'air gap ne varie pas pendant nos essais. Le Tableau 2-2 résume les différents niveaux pour les 4 facteurs.

Tableau 2-2 – Niveaux des facteurs du plan d'expériences

Facteurs	Niveau minimum	Niveau intermédiaire	Niveau maximum
Débit de polymères (g/min/capillaire) - x1	0,03	/	0,08
Débit d'air primaire (m <sup>3</sup> /h) - x2	150	/	300
DCD (cm) - x3	8	16	24
Température de filage (°C) - x4	240°C	/	255°C

Nous avons donc développé des médias « nano » meltblown à partir d'un plan factoriel complet avec 3 facteurs à deux niveaux (débit de polymères, débit d'air primaire et température de filage) et 1 facteur à 3 niveaux (DCD). Le plan d'essai est détaillé dans le Tableau 2-3.

Nous avons visé une masse surfacique de 15 g/m<sup>2</sup> en adaptant la vitesse du collecteur par rapport au débit de polymères.

Tableau 2-3 –Configurations du procédé meltblown et caractéristiques des structures pour l'étude de l'influence du débit de polymère, du débit d'air sur la structure, de la DCD et de la température du polymère sur les caractéristiques de structures

Débit de polymère (g/min/capillaire)	Débit d'air primaire (m3/h)	DCD (cm)	T° filage (°C)	T° Air (°C)	Mediane (µm)	CV%	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Epaisseur (mm)	Compacité (%)
0,03	150	8	240		2,17	93%	16	0,19	8,7%
0,03	300	8	240		1,05	67%	16	0,15	11,5%
0,08	150	8	240		6,32	57%	14	0,27	5,5%
0,08	300	8	240		1,31	60%	14	0,19	7,7%
0,03	150	16	240		1,19	67%	12	0,18	7,4%
0,03	300	16	240		2,33	85%	17	0,20	8,9%
0,08	150	16	240		7,45	52%	11	0,24	5,0%
0,08	300	16	240		1,98	89%	12	0,18	7,2%
0,03	150	24	240		3,53	51%	17	0,29	6,1%
0,03	300	24	240		0,72	55%	13	0,20	7,0%
0,08	150	24	240		6,77	68%	14	0,34	4,2%
0,08	300	24	240	240	1,50	55%	14	0,23	6,4%
0,03	150	8	255		3,55	41%	13	0,17	7,8%
0,03	300	8	255		1,48	41%	16	0,13	13,3%
0,08	150	8	255		7,34	33%	13	0,23	5,7%
0,08	300	8	255		0,81	52%	14	0,15	9,9%
0,03	150	16	255		5,64	27%	15	0,22	7,4%
0,03	300	16	255		1,74	54%	15	0,22	7,3%
0,08	150	16	255		9,84	32%	14	0,27	5,2%
0,08	300	16	255		2,82	52%	13	0,18	7,6%
0,03	150	24	255		1,65	38%	14	0,25	5,9%
0,03	300	24	255		1,26	23%	16	0,25	6,8%
0,08	150	24	255		8,65	49%	13	0,29	4,7%
0,08	300	24	255		1,69	45%	14	0,23	6,2%

Des analyses de variance de type (ANOVA) ont été réalisées avec le logiciel Minitab 17.0 pour étudier et comprendre les effets et les interactions des facteurs (Débit de polymère, débit d'air primaire, DCD et température de filage) sur le diamètre moyen des filaments, le coefficient de variation de la distribution des filaments et la compacité. Pour cela, nous avons considéré uniquement les termes d'ordre 1 et les termes d'interaction d'ordre 2, et négligé les termes d'ordre supérieur.

Afin de simplifier la lecture des analyses de variance, nous avons associé chaque facteur à un indice numéroté. Le débit d'air primaire, le débit de polymères, la DCD et la température de filage correspondent respectivement à x1, x2, x3 et x4. De la même manière, les interactions entre deux facteurs sont associées à la combinaison des indices de chaque facteur. Par exemple, l'interaction entre le débit d'air primaire (x1) et le débit de polymère (x2) est noté x1\*x2.

## 2.2.3 ANALYSE DES RESULTATS DU PLEX1

### 2.2.3.1 Influence sur le diamètre des filaments

Les résultats de l'ANOVA avec comme réponse le diamètre moyen des filaments (médiane de la distribution des diamètres de filaments) sont regroupés dans le Tableau 2-4.

L'analyse statistique indique que le débit de polymères (x1), le débit d'air primaire (x2) et leurs interactions (x1\*x2) sont les facteurs qui affectent significativement le diamètre moyen des filaments ( $p < 0,05$ ). La DCD, la température de filage et les autres interactions ne sont pas significatives.

Tableau 2-4 – Analyse de variance de l'influence du débit de polymères, débit d'air primaire, DCD et température de filage sur le diamètre moyen des filaments (médiane des diamètres)

Source	DL	SomCar ajust	CM ajust	Valeur F	Valeur de p
x1	1	38,197	38,197	38,55	0,000
x2	1	86,334	86,3344	87,14	0,000
x3	2	5,668	2,834	2,86	0,109
x4	1	4,381	4,3806	4,42	0,065
x1*x2	1	30,36	30,3604	30,64	0,000
x1*x3	2	1,242	0,6211	0,63	0,556
x1*x4	1	0,077	0,0768	0,08	0,787
x2*x3	2	0,043	0,0215	0,02	0,979
x2*x4	1	2,818	2,8177	2,84	0,126
x3*x4	2	2,663	1,3315	1,34	0,309
Erreur $\epsilon$	9	8,917	0,9907		
Total	23	180,7			

DL : degré de liberté

SomCar ajust : Somme des Carrées Ajustés

CM ajust : Carré moyen Ajusté

Comme attendu, l'augmentation du débit d'air primaire entraîne une diminution du diamètre moyen par l'augmentation de l'étirage subie des filaments. De plus, un débit de polymères faible induit des filaments plus fins en sortie de filière et donc des filaments plus fins. Cependant, on note une interaction importante entre le débit de polymère et le débit d'air primaire ainsi comme le montre la Figure 2-7, la réduction du diamètre moyen des filaments est beaucoup plus importante lorsque le débit de polymères est fort (0,053 g/min/capillaire) que lorsque le débit est minimum (0,03 g/min/capillaire).

L'influence du débit de polymères et du débit d'air primaire sur le diamètre moyen a été largement observée (Bresee & Qureshi 2006; Hammonds et al. 2014; Hassan 2013) dans la littérature cependant l'interaction entre les deux paramètres a été rarement mise en avant.

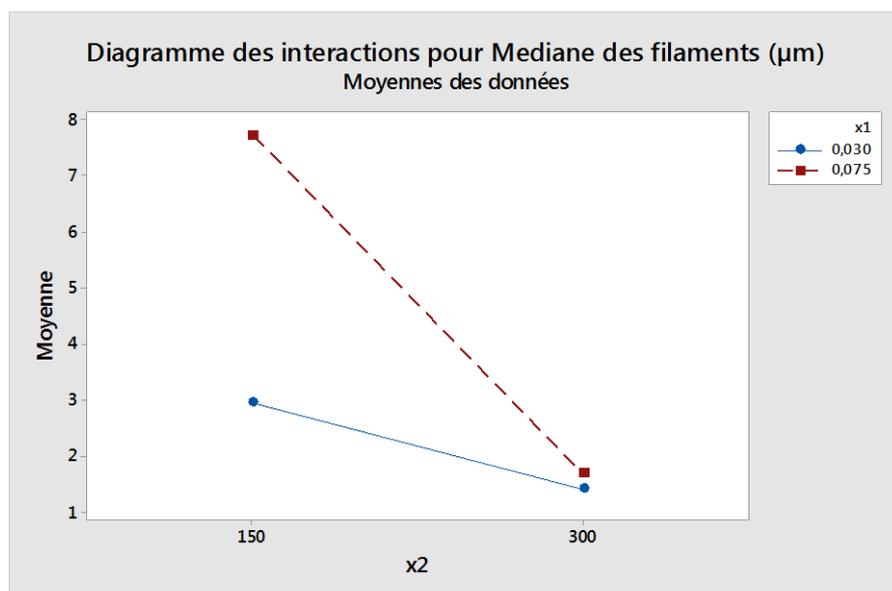


Figure 2-7 – Diagramme des interactions entre le débit de polymères (x1) et le débit d'air primaire (x2)

### 2.2.3.2 Influence sur la distribution du diamètre des filaments (CV%)

Les résultats de l'ANOVA avec comme réponse la distribution du diamètre des filaments via le coefficient de variation de la distribution des diamètres des filaments (CV%) sont regroupés dans le Tableau 2-5.

Tableau 2-5 – Analyse de variance de l'influence du débit de polymères, débit d'air primaire, DCD et température de filage sur le coefficient de la variation du diamètre des filaments CV%

Source	DL	SomCar ajust	CM ajust	Valeur F	Valeur de p
x1	1	0,000017	0,000017	0,00	0,964
x2	1	0,020417	0,020417	2,70	0,135
x3	2	0,038633	0,019317	2,55	0,132
x4	1	0,4056	0,4056	53,58	0,000
x1*x2	1	0,01215	0,01215	1,60	0,237
x1*x3	2	0,052033	0,026017	3,44	0,078
x1*x4	1	0,024067	0,024067	3,18	0,108
x2*x3	2	0,119633	0,059817	7,90	0,010
x2*x4	1	0,0024	0,0024	0,32	0,587
x3*x4	2	0,0189	0,00945	1,25	0,332
Erreur	9	0,068133	0,00757		
Total	23	0,761983			

DL : degré de liberté

SomCar ajust : Somme des Carrées Ajustés

CM ajust : Carré moyen Ajusté

L'analyse statistique indique que la température de filage (x4) est significative ( $p < 0,05$ ). Le débit de polymère, le débit d'air primaire et la DCD ne sont pas significatifs. On peut noter une interaction entre le débit d'air primaire et la DCD (x2\*x3). Néanmoins, le débit d'air primaire et la DCD ne sont pas significatifs, ainsi l'interaction x2\*x3 peut être négligée.

La Figure 2-8 représente le coefficient de variation CV% dans les différentes configurations de paramètres pour une température de filage de 242°C et 255°C. Les résultats montrent une diminution du CV% pour chaque configuration. L'amélioration du CV% peut être divisée par 2 comme dans le cas d'un débit d'air de 150 m<sup>3</sup>/h, une DCD de 8 cm et un débit de polymères de 0,03 g/min/capillaire ; le CV% chute de 93% à 41%. L'expansion du polymère après avoir été comprimé à l'intérieur du capillaire de la filière est une explication au phénomène de gonflement en sortie de filière et d'instabilité du diamètre en sortie de filière. Dans ce cas, l'augmentation de la température réduit la viscosité à l'état fondu du polymère et réduit sa compression au sein du capillaire. Ainsi lorsqu'il sort de la filière, le gonflement et l'instabilité sont moins importants. Cette relation n'est pas abordée dans la littérature, notamment dû au fait que la distribution des diamètres des filaments est peu étudiée (Ellison et al. 2007a; Ellison et al. 2007b; Tan et al. 2010). Ellison et al., 2007b, suggèrent que des gouttes de polymères peuvent se former à cause de tensions surfaces dans le cas de fibres ultrafines lorsque la température est importante, mais nous n'avons pas observé de phénomènes de ce type.

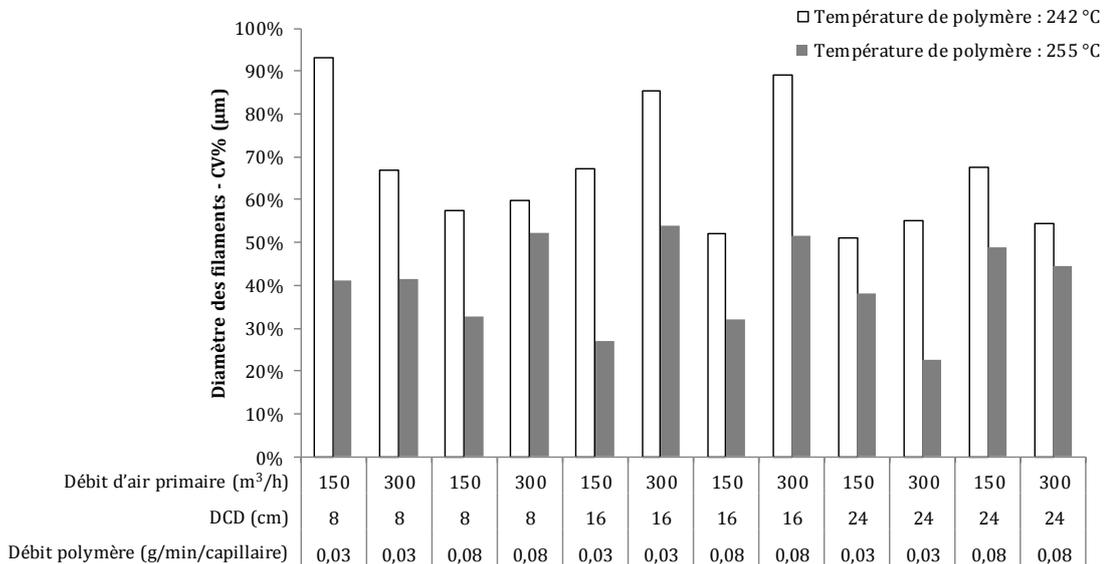


Figure 2-8 – Coefficient de variation CV% dans les différentes configurations du plan d'expériences pour des températures de filage de 242°C et 255°C

### 2.2.3.3 Influence sur la compacité du média

Les résultats de l'ANOVA avec comme réponse la compacité du média sont regroupés dans le Tableau 2-6.

L'analyse statistique indique que le débit de polymère (x1), le débit d'air primaire (x2), la DCD (x3) et les interactions entre le débit de polymère et la DCD (x1\*x3) et le débit d'air primaire et la DCD (x2\*x3) sont des paramètres significatifs (p<0,05). Pour illustrer les interactions entre les paramètres, nous avons synthétisé les interactions entre tous les paramètres dans la Figure 2-9.

Tableau 2-6 – Analyse de variance de l'influence du débit de polymères, débit d'air primaire, DCD et température de filage sur la compacité

Source	DL	SomCar ajust	CM ajust	Valeur F	Valeur de p
x1	1	0,002169	0,002169	37,7	0,000
x2	1	0,002875	0,002875	49,98	0,000
x3	2	0,003307	0,001654	28,74	0,000
x4	1	0,000018	0,000018	0,32	0,587
x1*x2	1	0,000043	0,000043	0,74	0,411
x1*x3	2	0,000495	0,000247	4,3	0,049
x1*x4	1	0,00007	0,00007	1,22	0,297
x2*x3	2	0,000678	0,000339	5,89	0,023
x2*x4	1	0,00003	0,00003	0,52	0,487
x3*x4	2	0,000139	0,000069	1,21	0,343
Erreur	9	0,000518	0,000058		
Total	23	0,010342			

DL : degré de liberté  
 SomCar ajust : Somme des Carrées Ajustés  
 CM ajust : Carré moyen Ajusté

La première ligne décrit l'évolution de la compacité pour le débit de polymère minimum et maximum en fonction du débit d'air primaire, de la DCD, et de la température de filage. La deuxième ligne affiche l'évolution de la compacité pour le débit d'air primaire minimum et maximum en fonction de la DCD et de la température de filage. Enfin, la troisième ligne représente l'évolution de la compacité pour 3 DCD différentes en fonction de la température de filage. En comparant l'allure des courbes de chaque graphique, nous pouvons évaluer l'influence de l'interaction. En effet, pour un même graphique, si les courbes sont parallèles cela signifie qu'il n'y a aucune interaction entre les paramètres. Au contraire, si les pentes des courbes sont très différentes, cela implique une interaction importante.

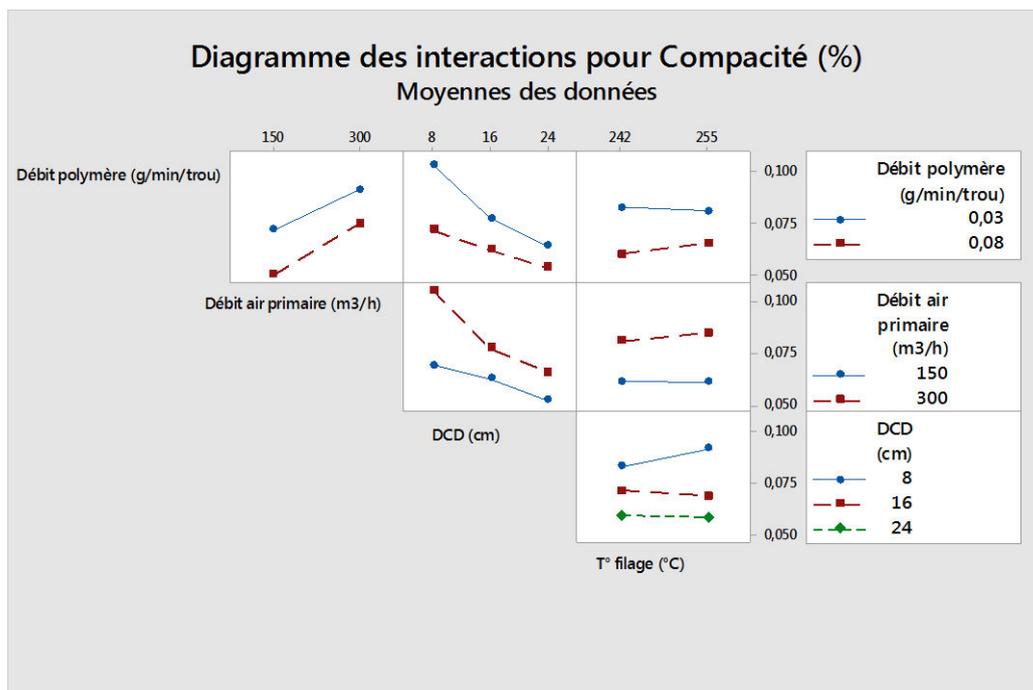


Figure 2-9 – Diagramme des interactions pour la compacité du média

En suivant cette grille de lecture, bien que l'ANOVA suggère une interaction significative pour les couples DCD/débit de polymère et DCD/débit d'air primaire, les interactions restent très négligeables par rapport à l'influence de la DCD, du débit de polymère et du débit d'air primaire. Nous allons donc exclure les interactions dans notre analyse.

L'analyse de l'influence de la DCD, du débit d'air primaire et du débit de polymères permet de distinguer plusieurs phénomènes. Tout d'abord, en augmentant la DCD, le cône formé par les filaments devient de plus en plus large (Figure 2-10). Ainsi, pour un même débit de polymères, les filaments se déposent sur une zone plus grande et forment donc un média moins dense, c'est-à-dire moins compact. Cette tendance où le média est plus ouvert lorsque la DCD augmente est décrite par quelques études (Hammonds et al. 2014; Lee & Wadsworth 1990). Cependant ces études se focalisent sur la taille des pores et la perméabilité à l'air plutôt que sur la compacité. Ensuite, l'influence du débit de polymère et du débit d'air primaire peut être reliée au diamètre des filaments. Ainsi, la diminution du diamètre des filaments impliquerait un média plus compact. Cela peut s'expliquer par la compression plus importante des fibres fines lors de la formation du voile du fait de la rigidité plus faible des fibres fines par rapport à des fibres plus grosses. Néanmoins, cette hypothèse nécessite d'être approfondie.



Figure 2-10 – Cône formé par les filaments en sortie de filière

## 2.2.4 PLAN D'EXPERIENCES COMPLEMENTAIRE PLEX2 : DEBIT VS DEBIT D'AIR PRIMAIRE

Même si le plan précédent a montré que le débit de polymères et le débit d'air primaire sont les deux facteurs significatifs sur le diamètre moyen des filaments, nous savons que la relation entre ces deux facteurs et le diamètre moyen des filaments ne sont pas linéaires. Ainsi, nous allons étudier l'influence du débit d'air primaire pour plusieurs débits de polymères sur le diamètre moyen des filaments à travers un plan d'expériences complémentaires (PLEX2).

Pour cela, nous avons utilisé le même polypropylène que pour le PLEX1 (Tableau 2-1). Nous avons visé une masse surfacique de 15 g/m<sup>2</sup> en adaptant la vitesse du collecteur par rapport au débit de polymères.

Des structures meltblown ont été créées pour 4 débits de polymères (0,02, 0,03, 0,05, 0,08 g/min/capillaire) à des débits d'air primaire réglés de 300 à 570 m<sup>3</sup>/h jusqu'à la rupture des filaments à l'étirage pour une température d'air primaire de 240°C, une DCD de 16 cm et une température de filage de 255°C. Dans le cadre de ces essais, nous avons pu réaliser certains des médias à un débit de 0,02 g/min/capillaire. Toutefois, la pression à l'intérieur de la filière nous a contraints à augmenter à 0,03 g/min/capillaire pour la suite des essais. Les configurations du procédé meltblown ainsi que les caractéristiques des structures sont résumées dans le Tableau 2-7.

Tableau 2-7 – Configurations du procédé meltblown et caractéristiques des structures pour l'étude de l'influence du débit de polymère et du débit d'air sur la structure.

Débit de polymères (g/min/capillaire)	Débit d'air primaire (m <sup>3</sup> /h)	T° filage (°C)	DCD (cm)	T° Air (°C)	Médiane (µm)	CV%	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Épaisseur (mm)	Compacité (%)
0,02	300	255	16	240°C	0,78	45%	12	0,20	6,2%
0,03	300				1,24	42%	14	0,22	6,5%
0,03	360	255	16	240°C	0,66	68%	17	0,26	6,8%
0,03	420				0,90	63%	19	0,33	6,0%
0,05	225				3,57	37%	18	0,27	6,8%
0,05	300				1,79	53%	18	0,25	7,3%
0,05	360				1,55	65%	14	0,22	6,4%
0,05	420	255	16	240°C	0,81	36%	17	0,25	6,9%
0,05	450				1,17	60%	/	/	/
0,05	480				1,48	33%	/	/	/
0,05	510				1,26	32%	18	0,27	6,7%
0,08	300				2,52	69%	13	0,21	6,5%
0,08	360				1,71	39%	19	0,25	7,6%
0,08	420				1,61	31%	19	0,25	7,7%
0,08	480	255	16	240°C	1,66	20%	15	0,22	6,8%
0,08	510				1,56	27%	/	/	/
0,08	540				1,47	42%	14	0,23	6,5%
0,08	570				1,47	26%	19	0,26	7,3%

### 2.2.5 ANALYSE DES RESULTATS DU PLEX2

La Figure 2-11 représente le diamètre médian des filaments (diamètre moyen des filaments) en fonction du débit d'air primaire pour 4 débits de polymères différents. L'évolution du diamètre médian des filaments en fonction du débit d'air primaire peut être divisée en deux phases. La première phase consiste en une diminution du diamètre médian des filaments lorsque le débit d'air primaire augmente. La seconde phase correspond à une évolution quasi constante du diamètre médian des filaments. Par exemple, pour un débit de polymère de 0,05 g/10 min, le diamètre diminue de 3,57  $\mu\text{m}$  à 0,81  $\mu\text{m}$  lorsque le débit d'air primaire augmente de 225 à 420  $\text{m}^3/\text{h}$  : c'est la première phase. Puis, à partir d'un débit d'air primaire de 420  $\text{m}^3/\text{h}$  jusqu'à 510  $\text{m}^3/\text{h}$ , le diamètre médian du filament oscille entre 1,17  $\mu\text{m}$  et 1,48  $\mu\text{m}$  : c'est la deuxième phase. La première phase s'explique par l'étirement des filaments lorsque le débit d'air augmente. Cependant, lorsque le débit d'air primaire est trop important, les filaments les plus fins cassent et sont éjectés de la structure : c'est le phénomène de « fly » (Bresee & Qureshi 2002). Cela limite alors le diamètre minimum des filaments. Le phénomène de « fly » s'accroît lorsque les filaments produits sont fins (Hassan et al. 2013).

Ensuite, la diminution du débit de polymères entraîne une réduction du diamètre médian des filaments pour un même débit d'air primaire.

Par exemple, pour un débit d'air de 300  $\text{m}^3/\text{h}$ , en diminuant le débit de polymère de 0,08 à 0,02 g/min/capillaire, le diamètre médian des filaments baisse de 2,52  $\mu\text{m}$  à 0,78  $\mu\text{m}$ . De même, pour un débit d'air de 360  $\text{m}^3/\text{h}$ , le diamètre médian des filaments diminue de 1,71  $\mu\text{m}$  à 0,66  $\mu\text{m}$  lorsque le débit de polymère diminue de 0,08 à 0,03 g/min/capillaire. Réduire le débit de polymère implique un double effet. D'une part, un débit de polymère plus faible signifie des filaments plus fins car moins de matière est utilisée pour les former. Puis, d'autre part, pour un même débit d'air, le filament est plus étiré lorsque les filaments en sortie de filière sont plus fins.

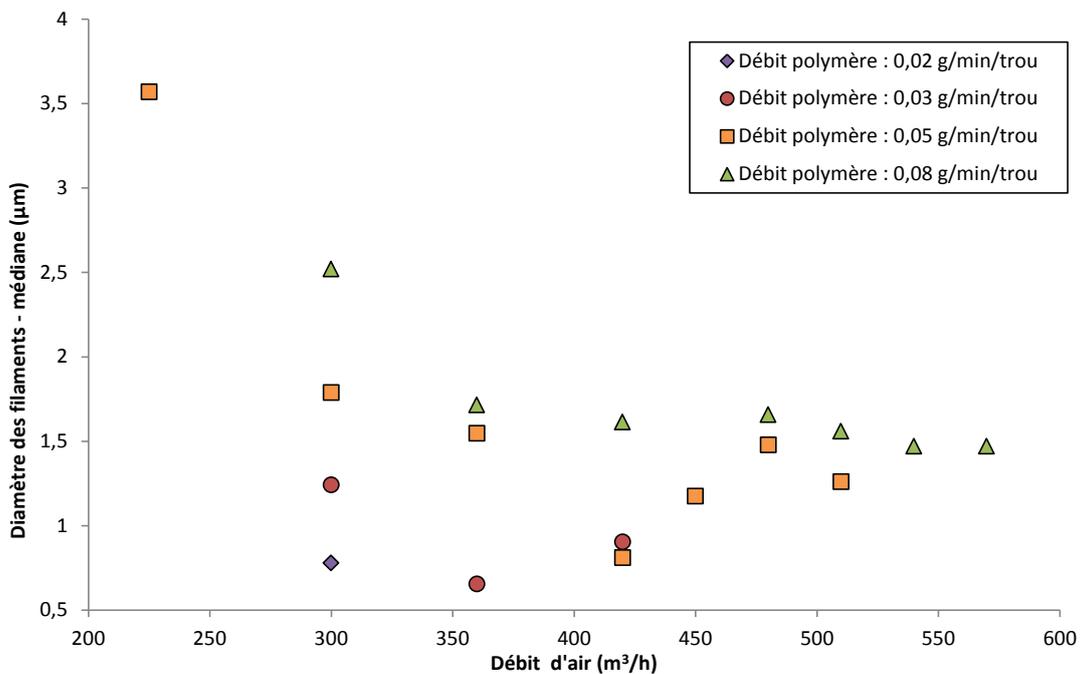


Figure 2-11 - Diamètre des filaments en fonction du débit d'air à 4 débits de polymères différents

Ces résultats suggèrent que pour obtenir les filaments plus fins possibles, il suffit de diminuer le débit de polymères au maximum et d'augmenter le débit d'air primaire au maximum. Or, cela est contradictoire, en diminuant le débit de polymères, la résistance du filament à l'étirage diminue aussi. Ainsi, pour un faible débit de polymères, le débit d'air primaire maximum avant rupture des filaments sera plus faible qu'avec un débit de polymères plus important. Il existe donc un compromis entre le débit de polymères et le débit d'air primaire à déterminer. Faut-il plutôt utiliser un débit de polymères important et étirer les filaments au maximum ou plutôt utiliser un faible débit de polymères quitte à étirer très peu les filaments ?

La Figure 2-11 permet de répondre à cette question. En effet, les diamètres les plus fins obtenus ont été réalisés pour des débits de polymères faibles (0,02 ou 0,03 g/min/capillaire) à des débits d'air primaire compris entre 300 et 360 m<sup>3</sup>/h.

Tandis que pour des débits de polymères plus importants (0,08 g/min/capillaire), l'augmentation du débit d'air primaire permet, certes, une diminution du diamètre des filaments, mais pas suffisante pour atteindre des diamètres très fins. De plus, l'augmentation du débit d'air primaire au-delà d'un débit d'air primaire critique génère le phénomène de « fly » qui limite la diminution du diamètre des filaments.

## 2.2.6 CONCLUSION SUR L'ETUDE DE L'INFLUENCE DES PARAMETRES PROCEDE

Cette étude par plan d'expériences montre que le diamètre moyen des filaments (diamètre médian) est influencé significativement par le débit d'air primaire et le débit de polymère.

Ainsi, ces analyses montrent que l'augmentation du débit d'air primaire permet une diminution du diamètre des filaments, mais qu'au-delà d'un certain débit d'air primaire, le diamètre des filaments ne diminue plus, limité par le phénomène de « fly ». De plus, la diminution du débit de polymères permet de réduire le diamètre des filaments même si cela implique un débit d'air primaire plus faible. En définitive, la stratégie optimale pour produire les filaments les plus fins semble être de diminuer le débit de polymère plutôt que de chercher à étirer davantage les filaments. De plus, l'augmentation de la température de filage permet de réduire l'amplitude de la distribution des diamètres (CV%). Enfin l'augmentation de la DCD et l'obtention de fibres plus fines réduisent la compacité.

## 2.2.7 ANALYSE DE L'HETEROGENEITE DU VOILE

La qualité du média est rarement analysée dans les études du procédé meltblown (Dutton 2008; Bhat & Malkan 2006). Il est à noter qu'en filtration une hétérogénéité importante du média induit une modification de l'écoulement de l'air et des particules et altère alors les propriétés de filtration. Par hétérogénéité, on peut distinguer à la fois la polydispersion du diamètre des fibres et la répartition spatiale de la matière dans le voile (aspect nuageux). Une répartition de matière non homogène peut se traduire de 3 manières simultanées ou indépendantes à savoir une variation locale de l'épaisseur, de la masse surfacique et de la compacité. Pour observer l'hétérogénéité sous forme de polydispersion de fibres, nous avons analysé précédemment le coefficient de variation de la distribution des diamètres de filaments. Dans cette partie, nous allons nous intéresser à l'uniformité de répartition de matière.

Tableau 2-8 – Caractéristiques de médias scannés pour l’observation de la qualité de répartition de matière

Echantillon	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Épaisseur (mm)	Compacité (%)	Diamètre moyen des filaments (µm)
A	12,6	0,23	5%	7,3
B	13,9	0,23	6%	1,71
C	16,2	0,13	13%	1,67
D	13,7	0,15	9%	0,89

Pour cela, nous avons réalisé des images de médias meltblown de 5x5cm à l’aide d’un scanner à éclairage par transmission de lumière Epson Perfection 4490 PHOTO avec une résolution d’image de 300 dpi. Le Tableau 2-8 regroupe les caractéristiques de 4 médias scannés pour l’observation de répartition de matière. Les images de ces 4 médias sont représentées dans les Figure 2-12, Figure 2-13, Figure 2-14 et Figure 2-15.

Les 4 images représentent un panel de défauts d’hétérogénéité que l’on peut retrouver sur les médias meltblown. Tout d’abord, la Figure 2-12 présente une uniformité moyenne, mais possède des lignes de défauts verticales. Elles sont dues à des capillaires de la filière bouchés par des résidus de polymères ou endommagés lors de sa manipulation. La Figure 2-13 représente un média avec une mauvaise répartition de matière. En effet, on distingue les différentes zones où les fibres sont regroupées et les zones avec moins de matière. Ces différences de répartition de matière vont induire des écoulements préférentiels qui altéreront les propriétés de filtration.

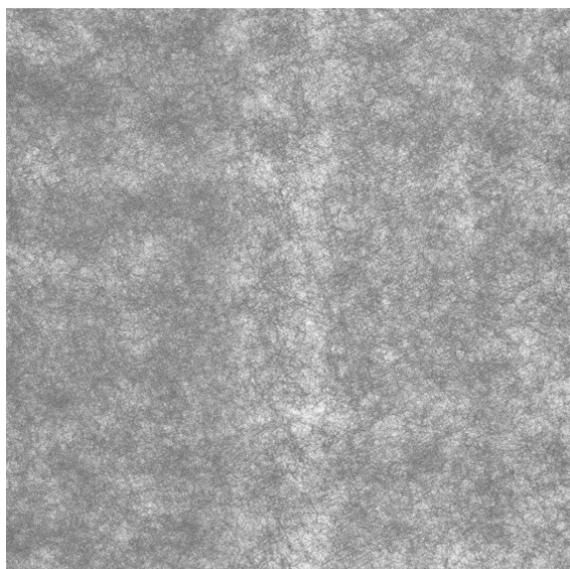


Figure 2-12 – Scan d’un média meltblown avec une uniformité moyenne et des lignes de défaut verticales (échantillon A)

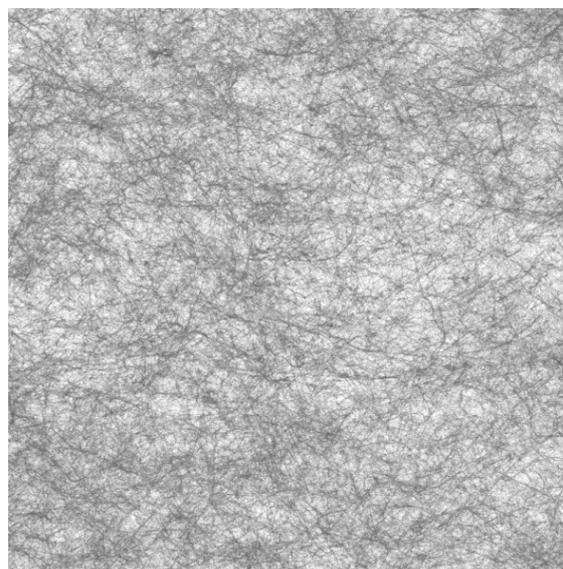


Figure 2-13 - Scan d’un média meltblown avec une uniformité mauvaise (échantillon B)

Ensuite, la Figure 2-14 présente une ligne de défaut verticale même si la répartition est uniforme et correcte. Enfin, la Figure 2-15 ne présente pas de lignes de défauts, mais encore une fois, la répartition de matière est moyenne avec différentes zones contenant moins de matière.

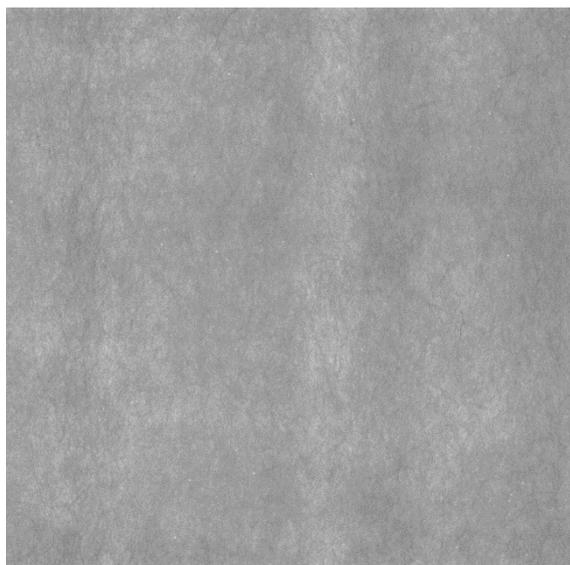


Figure 2-14 – Scan d'un média meltblown avec une bonne uniformité, mais des lignes de défauts (échantillon C)

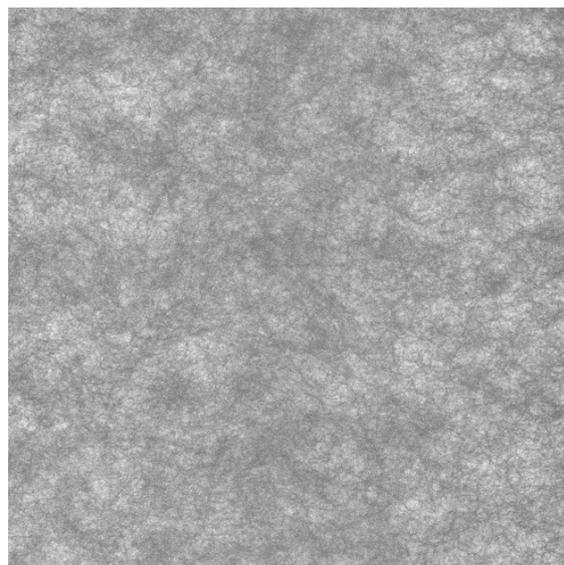


Figure 2-15- Scan d'un média meltblown avec une uniformité moyenne (échantillon D)

Malgré l'observation de ces défauts, il existe peu de méthodes pour les caractériser et les quantifier. Parmi les méthodes existantes, l'utilisation de la tomographie à rayon X permet de visualiser l'organisation spatiale des fibres dans un échantillon. Bien que cette méthode fonctionne, elle nécessite des coûts élevés et le volume étudié reste de l'ordre du micromètre ce qui ne représente pas l'échantillon tout entier. Une approche plus subjective consiste à réaliser une cotation par un panel d'experts.

Dans le cadre de la thèse, nous nous sommes focalisés sur l'influence de l'hétérogénéité sur les propriétés de filtration plutôt que sur la caractérisation et la quantification de l'hétérogénéité. Ainsi, dans le chapitre 4, nous analyserons l'influence de ce type d'hétérogénéité sur les propriétés de filtration.

## 2.3 INFLUENCE DU POLYMERE (DE LA VISCOSITE A L'ETAT FONDU DU POLYMERE)

### 2.3.1 OBJECTIFS DES ESSAIS

Un paramètre peu étudié dans la littérature est l'influence de la viscosité à l'état fondu sur le diamètre moyen des filaments, sur la qualité de la distribution des diamètres de filaments et sur la compacité du média. En effet, depuis le développement du procédé meltblown, la viscosité des polymères disponibles a diminué progressivement. Les premiers procédés meltblown utilisaient des polypropylènes (PP) avec des viscosités à l'état fondu importantes avec un MFI compris entre 12,7 et 300 g/10 min (Choi et al. 1988; Dutton 2008) puis dans les années 70 et 80, des polypropylènes avec des MFI de 1200 g/10 min ont été développés (Dutton 2008). Aujourd'hui, certains polymères ont une viscosité à l'état fondu beaucoup plus faible avec un MFI de 1800 g/10 min. Cette réduction de viscosité à l'état fondu a notamment permis de réduire significativement le débit de polymère par capillaire et donc d'obtenir des fibres plus fines. Cependant, la baisse de viscosité à l'état fondu limite l'étirage à cause de la diminution des performances mécaniques. Nous allons voir de quelle manière l'accès à des polymères avec des viscosités à l'état fondu permet de réduire le diamètre moyen des filaments. En parallèle de l'étude du diamètre moyen des filaments (médiane des diamètres), nous allons aussi étudier phénomène de "fly" la distribution des diamètres de filaments (CV%) et la compacité du média. La Figure 2-16 résume la démarche de l'étude.

Pour cela, nous avons testé 3 polypropylènes (PP) avec 3 degrés de viscosité à l'état fondu différents : viscosité élevée (fluidité faible), viscosité intermédiaire (fluidité intermédiaire) et viscosité faible (fluidité élevée) avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min.

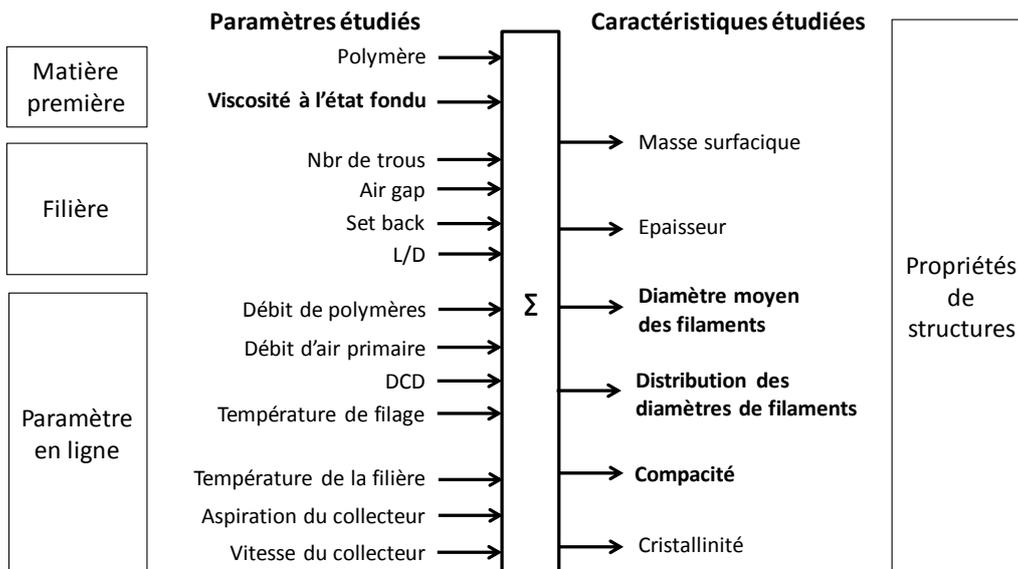


Figure 2-16 - Démarche d'étude de l'influence de la viscosité à l'état fondu du polymère sur les caractéristiques de structures

### 2.3.2 POLYMERES ET CONDITIONS DES ESSAIS DU PLEX3

Les caractéristiques des trois polypropylènes (PP) utilisés sont présentées dans le Tableau 2-9.

Tableau 2-9 – Caractéristiques des polymères meltblown utilisés pour l'étude de l'influence de la viscosité sur les caractéristiques de structures

Polymère	Référence	Fournisseur	Température de fusion (°C)	Melt flow index MFI (g/10 min) à 230°C
PP	Borflow HL508FB	Boréal	156-160 °C	800
PP	Borflow HL512FB	Boréal	158°C	1200
PP	MF650Y	Lyondellbasell	/	1800

Chaque polymère possède une viscosité à l'état fondu de degrés différents : une viscosité élevée (MFI de 800 g/10 min), une viscosité intermédiaire (MFI de 1200 g/10 min) et une viscosité faible (MFI de 1800 g/10 min).

Tableau 2-10 - Configurations du procédé meltblown et les caractéristiques des structures pour l'étude de l'influence de la fluidité du polymère sur la structure.

Configuration du procédé meltblown						Caractéristiques des structures					
MFI (g/10min)	Débit de polymères (g/min/capillaire)	Débit d'air primaire (m3/h)	T° filage (°C)	DCD (cm)	T° Air (°C)	Médiane (µm)	IQ (µm)	CV%	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Épaisseur (mm)	Compacité (%)
800	0,02	270	255	16	240	1,23	0,70	57%	15	0,24	6,5%
	0,03	300				1,72	0,79	46%	15	0,23	6,6%
	0,03	360				1,43	0,69	48%	15	0,28	5,7%
	0,05	300				2,45	1,06	43%	17	0,25	7,0%
	0,05	420				1,72	0,69	40%	17	0,27	6,9%
	0,08	300				3,39	1,50	44%	17	0,27	6,5%
	0,08	420				1,92	0,81	42%	17	0,25	7,0%
	0,08	588				1,47	0,65	44%	17	0,27	6,8%
1200	0,03	300	255	16	240	1,24	0,53	42%	14	0,22	6,6%
	0,03	360				0,66	0,45	68%	17	0,26	7,0%
	0,05	300				1,79	0,95	53%	18	0,25	7,5%
	0,05	420				0,81	0,30	36%	17	0,25	7,1%
	0,08	300				2,52	1,74	69%	13	0,21	6,6%
	0,08	420				1,61	0,50	31%	19	0,25	7,9%
	0,08	480				1,66	0,33	20%	15	0,22	6,9%
	0,08	600				0,98	0,45	46%	15	0,23	6,8%
1800	0,02	270	255	16	240	0,68	0,50	73%	14	0,24	6,4%
	0,03	300				1,09	0,50	46%	17	0,26	7,1%
	0,03	360				1,10	0,44	40%	17	0,32	5,6%
	0,05	300				2,09	1,21	58%	16	0,25	6,9%
	0,05	420				1,15	0,51	44%	17	0,32	5,6%
	0,08	300				2,19	0,98	45%	16	0,24	7,1%
	0,08	420				1,44	0,58	40%	17	0,25	7,0%
	0,08	480				1,24	0,34	28%	17	0,28	6,5%

Le plan d'essais PLEX3 suivi est détaillé dans le Tableau 2-10. Nous avons choisi de fixer la température de l'air à 240°C, la DCD à 16 cm et la température de filage à 255°C et de faire varier le débit de polymères de 0,02 et 0,08 g/min/capillaire et le débit d'air primaire de 300 à 600 m<sup>3</sup>/h.

### 2.3.3 ANALYSE DES RESULTATS DU PLEX3

#### 2.3.3.1 Influence sur le diamètre des filaments

La Figure 2-17 regroupe la médiane des diamètres des filaments pour chaque fluidité de polymères, pour différents débits de polymères, et pour différents débits d'air primaire.

Tout d'abord, pour la plupart des données, le diamètre moyen des filaments diminue lorsque l'on diminue la viscosité à l'état fondu (augmente la fluidité) du polymère. Par exemple, dans le cas d'un débit d'air de 300 m<sup>3</sup>/h et un débit de polymères de 0,08 g/min/capillaire, le diamètre moyen de filament est de 3,4 µm pour une viscosité à l'état fondu élevée (MFI de 800 g/10 min) et diminue jusqu'à 2,2 µm pour une viscosité à l'état fondu faible (MFI de 1800 g/10 min). Ainsi, réduire la viscosité (augmenter la fluidité) du polymère permet de l'étirer davantage et d'obtenir des filaments plus fins.

Une étude de Nayak et al., 2012, présente un résultat similaire où le diamètre moyen diminue lorsque la viscosité à l'état fondu du PP diminue avec un MFI qui passe de 100 à 300 g/10 min.

Dans notre cas, on peut noter deux exceptions où le diamètre de filament augmente lorsque l'on passe d'une viscosité à l'état fondu intermédiaire (MFI de 1200 g/10 min) à une viscosité à l'état fondu faible (MFI de 1800 g/10 min). Ces exceptions peuvent être attribuées au phénomène de « fly » (Bresee & Qureshi 2002; Hassan et al. 2013). En effet, pour atteindre une viscosité à l'état fondu faible (fluidité élevée), le polymère possède des chaînes moléculaires de plus en plus petites. Par conséquent, malgré une réduction de la viscosité à l'état fondu (augmentation de la fluidité), la résistance mécanique du polymère diminue. Ici, l'association d'un débit d'air primaire important (360 m<sup>3</sup>/h et 420 m<sup>3</sup>/h) et d'une viscosité à l'état fondu faible (MFI de 1800 g/10 min) favorise le phénomène de « fly ». De ce fait, le diamètre moyen obtenu lorsque ce phénomène a lieu est plus grand que le diamètre obtenu avec un polymère plus visqueux, mais plus résistant. Ainsi, les filaments les plus fins sont obtenus pour une viscosité à l'état fondu intermédiaire avec un MFI de 1200 g/10 min. Finalement, cette étude montre qu'un polymère moins visqueux (plus fluide) à l'état fondu permet d'avoir des filaments plus fins, car ils s'étirent davantage. Cependant, lorsque le polymère est faiblement visqueux et est excessivement étiré, le phénomène de « fly » apparaît. Ainsi, il est nécessaire de travailler avec un polymère suffisamment fluide pour s'étirer, mais assez résistant mécaniquement pour ne pas se briser. Dans la configuration actuelle de notre procédé meltblown, un polymère avec une fluidité intermédiaire (1200 g/10 min) paraît le plus adapté pour obtenir les filaments les plus fins possible.

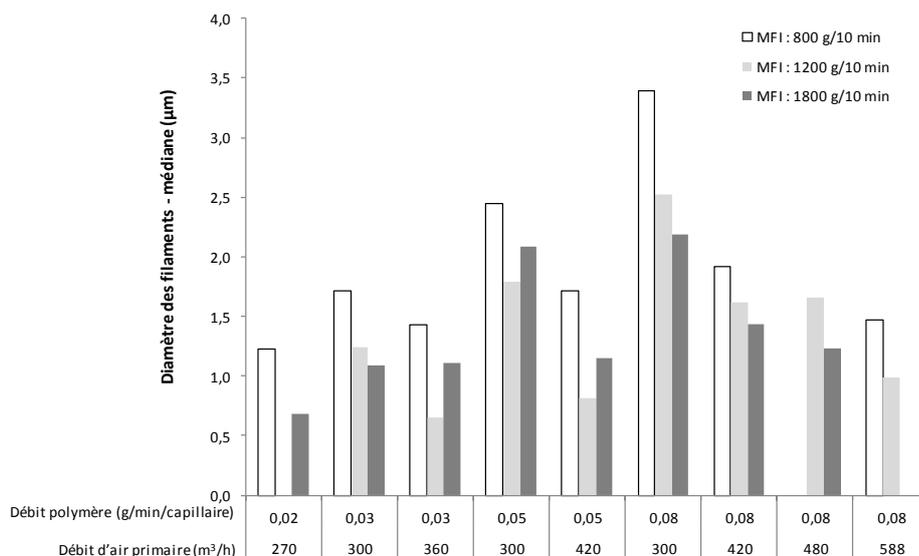


Figure 2-17 – Médiane des diamètres de filaments pour différentes configurations meltblown pour une viscosité à l'état fondu élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min

### 2.3.3.2 Influence sur la distribution du diamètre des filaments

La Figure 2-18 compare le coefficient de variation des diamètres de filaments pour des polymères PP avec une viscosité à l'état fondu élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min. Pour chaque couple de débit de polymère et de débit d'air primaire, le CV% semble évoluer sans suivre une tendance particulière lorsque la viscosité à l'état fondu diminue. Par exemple, pour un débit de polymère de 0,03 g/min/capillaire et un débit d'air primaire de 300 m³/h, le CV% reste quasi constant à 45%. Au contraire, pour un débit de 0,05 g/min/capillaire et un débit d'air primaire de 300 m³/h, le CV% augmente de 43% à 58%. La viscosité à l'état fondu paraît moins significative que les paramètres du procédé telle que la température de filage sur la distribution des diamètres de filaments.

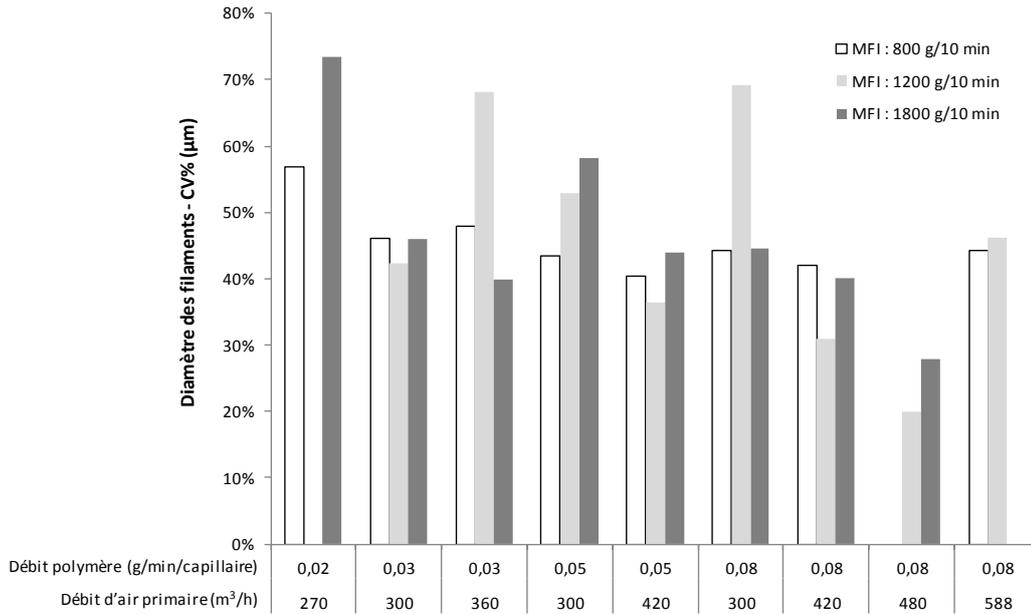


Figure 2-18 – Coefficient de variation des diamètres de filaments pour différentes configurations meltblown pour une viscosité à l'état fondu élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min

### 2.3.3.3 Influence sur la compacité du média

La Figure 2-19 examine la compacité en fonction de 3 degrés de viscosité à l'état fondu : élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min pour différentes configurations meltblown. La compacité varie entre 5,5 et 7,5% pour toutes les configurations meltblown et degrés de viscosité à l'état fondu. De même que pour la distribution, aucune tendance quant à l'influence de la viscosité à l'état fondu sur la compacité n'apparaît.

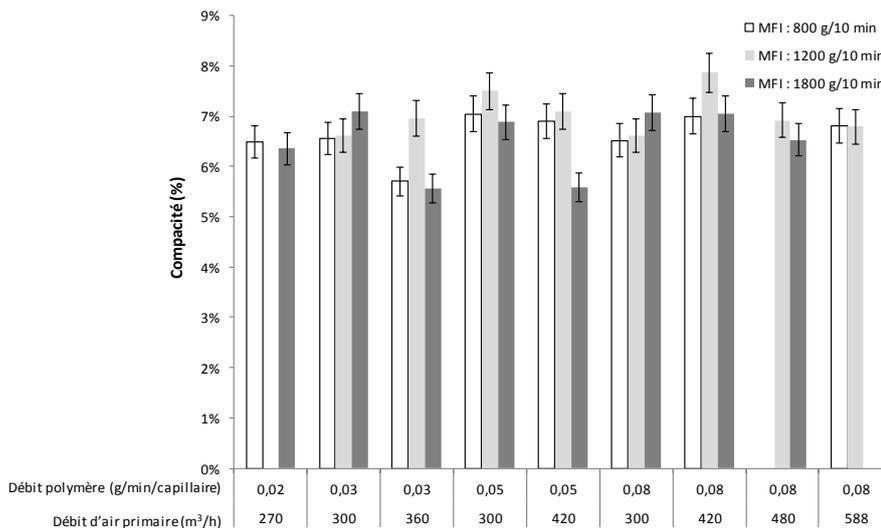


Figure 2-19 – Compacité dans différentes configurations meltblown pour une viscosité à l'état fondu élevée, intermédiaire et faible avec respectivement un MFI de 800, 1200 et 1800 g/10 min

### 2.3.4 CONCLUSION DE L'ETUDE DE L'INFLUENCE DE LA VISCOSITE A L'ETAT FONDU DU POLYMERE

Dans cette partie, nous avons étudié l'influence de la viscosité à l'état fondu sur le diamètre moyen des filaments, de la distribution des diamètres de filaments (CV%) et la compacité pour différents débits d'air et débits de polymères. Cette étude montre que réduire la viscosité à l'état fondu du polymère permet de réduire le diamètre moyen des filaments. Cependant lorsque le débit d'air primaire est important et le débit de polymères faible, le diamètre moyen des filaments augmente lorsque la viscosité à l'état fondu diminue. Une des explications est la cassure des filaments les plus fins lorsque le débit d'air primaire est trop important et que les filaments sont peu résistants mécaniquement (phénomène de « fly ») comme c'est le cas pour les filaments avec une viscosité à l'état fondu faible (MFI de 1800 g/10 min) à un faible débit de polymères. Ainsi, réduire la viscosité à l'état fondu au-delà d'un degré intermédiaire (MFI de 1200 g/10 min) nécessite d'utiliser un débit d'air primaire faible pour éviter tout phénomène de « fly ».

Ensuite, la viscosité à l'état fondu ne semble pas influencer significativement le CV% et la compacité du média.

En théorie, l'utilisation d'un polymère plus fluide permet de diminuer le débit de polymères par capillaire. Or, dans le cas du procédé meltblown du CETI, le débit de polymères par capillaire est limité à 0,02 ou 0,03 g/min/capillaire pour des raisons techniques. En effet, les pompes volumétriques possèdent une cylindrée trop grande ce qui limite le débit de polymères par capillaire minimum. Par conséquent, l'utilisation d'un polymère avec une viscosité faible (MFI de 1800 g/10 min) serait potentiellement intéressante dans le cas où nous souhaitons diminuer davantage le débit de polymères par capillaire en adaptant le circuit d'extrusion actuel et plus particulièrement en réduisant la cylindrée de la pompe volumétrique.

## 2.4 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Nous avons utilisé le procédé « nano » meltblown afin de développer des structures à fibres ultrafines. Pour cela, nous avons présenté et détaillé le fonctionnement du procédé meltblown ainsi que les spécificités du procédé « nano » meltblown comme la géométrie de la filière « nano ».

Ensuite, nous avons étudié l'influence de paramètres procédés en ligne à savoir le débit de polymères, le débit d'air primaire, la DCD et la température de filage sur le diamètre moyen des filaments, l'amplitude de la distribution des diamètres de filament et la compacité à l'aide d'un plan factoriel complet. La réalisation et l'étude des résultats de ce plan d'expériences confirment des résultats classiques telles que la diminution du diamètre des filaments lorsque le débit d'air augmente ou que le débit de polymère diminue ou l'évolution de la compacité en fonction de la DCD. De plus, nous avons pu mettre en avant des phénomènes peu étudiés tels que la réduction de la distribution du diamètre des filaments lorsque la température de filage augmente, et l'interaction entre le débit de polymère et le débit d'air. En effet, la réduction du diamètre médian lorsque le débit d'air primaire augmente est beaucoup plus faible lorsque le débit de polymères est faible que lorsqu'il est élevé. Autrement dit, deux stratégies émergent pour la réduction du diamètre des filaments, faut-il plutôt réduire le débit de polymère ou augmenter le débit d'air primaire ?

Pour répondre à cette question, nous avons étudié l'influence du débit de polymères et du débit d'air primaire sur le diamètre des filaments sur une gamme plus importante de réglages. Cette étude souligne deux phases d'évolution du diamètre moyen des filaments en fonction du débit d'air primaire : une première phase où le diamètre moyen chute puis une deuxième phase où il reste constant. Cette deuxième phase s'explique par le phénomène de « fly » où les filaments les plus fins se rompent à cause du débit d'air trop important. Au contraire, réduire le débit de polymères permet d'atteindre des diamètres moyens de 0,66  $\mu\text{m}$  soit des fibres ultrafines. Ces résultats montrent donc que la meilleure stratégie pour obtenir des fibres fines est la diminution du débit de polymères quitte à réduire l'étirage plutôt que de chercher à étirer un maximum les filaments. Le procédé « nano » meltblown du CETI nous permet de réduire le débit de polymères jusqu'à 0,02 g/min/capillaire. Pour réduire davantage le débit de polymères et obtenir des filaments plus fins, il est important de pouvoir utiliser des pompes volumétriques adaptées avec une cylindrée moins importante et donc d'investir dans de nouveaux équipements. Enfin, nous avons observé qualitativement les différents types de défauts d'hétérogénéité de nos médias à l'aide d'un scanner à transmission. On retrouve des défauts de répartition de matière liée à des problèmes de filières ou de formation du voile.

Par la suite, nous avons étudié spécifiquement l'influence de la viscosité à l'état fondu du polymère sur le diamètre moyen des filaments, l'amplitude de la distribution des diamètres de filaments et la compacité. Les résultats montrent une diminution du diamètre moyen pour une même configuration du procédé lorsque la viscosité à l'état fondu diminue (MFI des polymères augmente de 800 à 1800 g/10 min). Cependant, les filaments les plus fins sont obtenus pour une viscosité intermédiaire (MFI de 1200 g/10min) avec un diamètre moyen de 0,66  $\mu\text{m}$ . Une des explications est la rupture des filaments les plus fins lorsque le débit d'air est trop important

(phénomène de « fly ») lorsque l'on utilise une viscosité à l'état fondu faible (MFI de 1800 g/10 min), car les filaments sont trop faibles mécaniquement pour résister à l'étirage. Au final, réduire la viscosité à l'état fondu jusqu'à un degré intermédiaire (MFI de 1200 g/10min) montre un intérêt certain, mais réduire la viscosité au-delà n'implique pas nécessairement une réduction du diamètre moyen. Cependant, l'utilisation d'un polymère avec une viscosité faible pourrait être intéressant dans le cas où le débit de polymère par capillaire diminuerait davantage. Le débit de polymères par capillaire est actuellement limité par le circuit d'extrusion notamment à cause d'une cylindrée des pompes volumétriques trop faibles. Ainsi, faire évoluer le circuit d'extrusion afin de réduire le débit de polymères par capillaire permettrait de réduire le fois le débit de polymères et de tester l'intérêt d'un polymère avec une viscosité faible à de très faibles débits de polymères.

En définitive, les différentes études nous ont permis de produire des médias à fibres ultrafines avec un diamètre médian minimum de 0,66  $\mu\text{m}$ . Cependant, les médias produits présentent une hétérogénéité aussi bien au niveau de la polydispersion du diamètre des filaments que de la répartition spatiale des filaments dans le voile (aspect nuageux). Dans le chapitre 4, nous aborderons les propriétés de filtration des médias à fibres ultrafines obtenus par le procédé « nano » meltblown et développerons en particulier l'influence de ces hétérogénéités sur les propriétés de filtration.

# Chapitre 3: ÉTUDE ET DEVELOPPEMENT DE MEDIAS SPUNBOND ILES-EN-MER HYDROFRACTURES A FIBRES SUBMICRONIQUES

Les médias à fibres submicroniques présentent, théoriquement, des propriétés intéressantes en filtration de l'air (§ 1.2.3). Un des moyens de fabriquer des médias à fibres ultrafines est l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer. Traditionnellement, après avoir formé un média composé de fibres îles-en-mer, l'élément mer est dissous soit avec de la soude (mer = CoPET) ou avec de l'eau chaude (mer = PVA, AQ48...) (Blades et al. 1963; Hiokki 1990). Afin d'éliminer l'opération supplémentaire de dissolution et l'utilisation de produit chimique, une nouvelle méthode a émergé : l'hydrofracturation de médias à fibres bicomposantes îles-en-mer (Ndaro et al. 2007; Anantharamaiah et al. 2008) . L'inconvénient de cette nouvelle technique est la compacité élevée des médias ainsi que la quantité importante d'énergie dépensée. Dans ce chapitre, nous allons étudier et développer une méthode permettant de créer des médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Ils correspondent à un média spunbond composé de filaments bicomposants îles-en-mer qui sont hydrofracturés, c'est-à-dire fracturés à l'aide des jets d'eau à hautes pressions du procédé d'hydroliage, afin d'extraire les îles de la mer (1.3.4). Actuellement, le but est de comprendre les mécanismes mis en œuvre lors de l'hydrofracturation tout en produisant les îles les plus fines. Un objectif parallèle est l'obtention d'un média fibreux non déstructuré par les jets d'eau hautes pressions.

Pour répondre à ce double objectif, il est important de caractériser l'hydrofracturation des filaments îles-en-mer. Dans la littérature, la mesure de la qualité de l'hydrofracturation des fibres se limite à une observation qualitative à l'aide d'observation au Microscope Electronique à Balayage (MEB) ou de tests mécaniques d'orientation (Ndaro et al. 2007; Anantharamaiah et al. 2008). Ici, nous ajoutons une étape de mesure quantitative en estimant un taux de fracturation. Ce taux de fracturation représente la quantité d'îles extraites du filament bicomposant îles-en-mer. Ainsi, un taux de 100% correspond à une fracturation complète du filament îles-en-mer avec les îles et l'élément mer dispersés dans la structure. Au contraire, un taux de fracturation de 0% correspond à un filament îles-en-mer non fracturé. L'estimation du taux de fracturation que nous proposons se fonde sur la mesure de la surface spécifique après hydrofracturation à l'aide d'un dispositif BET.

Afin de comprendre les mécanismes mis en œuvre lors de l'hydrofracturation, nous avons étudié l'influence de 3 paramètres sur le taux de fracturation à savoir le couple de polymères îles/mer, le ratio îles/mer et la pression des jets d'eau.

En effet, chaque couple de polymères présente des propriétés mécaniques et une adhésion îles/mer différentes, et ne se fracture donc pas de la même manière. Nous avons sélectionné trois couples de polymères îles/mer ou I/S (Island/Sea): PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA.

Ensuite, le ratio îles/mer (I/S) représente la fraction en masse du polymère île et du polymère mer. Il influence la fracturation, car a priori une quantité de mer importante nécessite une force plus importante pour être hydrofracturée. De plus, réduire le ratio île/mer permet de réduire le diamètre des filaments sans modifier le pack de filage. Ainsi, mettre en avant les relations entre le ratio île/mer et le taux de fracturation permettra d'optimiser le diamètre des îles et l'hydrofracturation.

Enfin, la pression des jets fournit la force et l'énergie pour générer l'hydrofracturation. Cependant, la pression des jets influence aussi les caractéristiques de structures telles que la masse surfacique, l'épaisseur, la compacité et la perméabilité du média. Ainsi, nous étudierons aussi les liens entre pression des jets et caractéristiques de structures pour évaluer la qualité du média final.

En parallèle, nous avons développé une nouvelle approche qui repose sur la dégradation de l'élément mer pour favoriser l'hydrofracturation. Des structures à bases de fibres îles-en-mer PP/PLA ont été développées. Puis, les médias ont été dégradés dans une enceinte climatique à haut taux d'humidité afin d'hydrolyser les échantillons avant d'être hydrofracturés. Le but est d'accroître la fracturation tout en limitant la dépense énergétique et l'impact des jets d'eau sur le média final.

## 3.1 MATERIELS ET METHODES DE CARACTERISATIONS

### 3.1.1 PROCEDE BICOMPOSANT SPUNBOND ILES-EN-MER UTILISE AU CETI

#### 3.1.1.1 Présentation du procédé spunbond bicomposant îles-en-mer

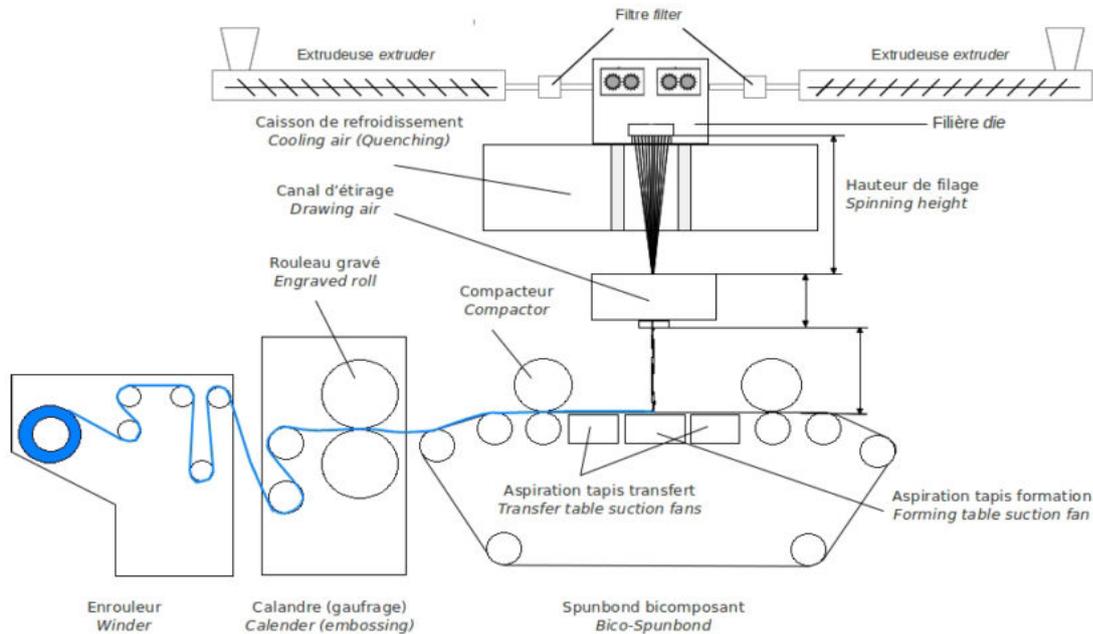


Figure 3-1- Schéma du procédé spunbond

Le procédé spunbond (Figure 3-1), comme le meltblown, est composé de plusieurs étapes : extrusion, filage, étirage, collecte. Tout d'abord, des granules de polymères sont insérés dans une extrudeuse où ils sont cisailés et chauffés afin de les faire fondre. Une fois fondu, le polymère est inséré dans la filière via des pompes volumétriques. Le procédé bicomposant permet à chaque polymère d'être préparé de manière indépendante. C'est seulement à la sortie de la filière que les deux polymères sont mis en contact. La géométrie îles-en-mer est garantie par le système de filière de Hills©. À la sortie de la filière, on obtient des filaments continus qui sont refroidis par deux caissons de refroidissement situés de part et d'autre de la filière. Ces filaments passent dans un canal d'aspiration qui va étirer les filaments. Les filaments étirés sont ensuite projetés par le canal d'étirage sur un tapis. Les filaments sont plaqués sur le tapis par une aspiration située en dessous du tapis. Enfin, le voile peut être calandré, c'est-à-dire passer entre deux rouleaux chauffés pour créer des points de fusion au sein du voile.

### 3.1.2 PROCEDE D'HYDROFRACTURATION UTILISE AU CETI

#### 3.1.2.1 Présentation du procédé d'hydroliage

L'hydroliage est tout d'abord un moyen de consolidation. Des jets d'eau sont propulsés à travers le voile de fibres puis rebondissent sur une grille placée sur un cylindre perforé aspirant (Figure 3-2). Les éclats de jets d'eau entremêlent les fibres et fracturent les filaments îles-en-mer.

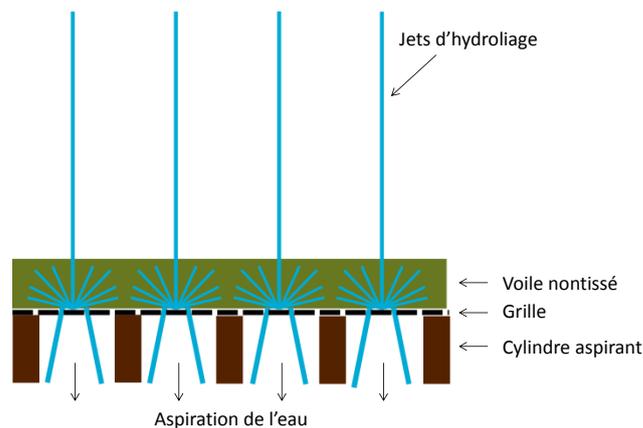


Figure 3-2 – Parcours des jets d'eau d'hydroliage dans un voile de fibres

Les jets d'eau sont formés à partir d'injecteurs équipés de lames d'hydroliage. L'eau sous pression arrive dans l'injecteur, puis se divise en jets d'eau en passant à travers la lame d'hydroliage (Figure 3-3).

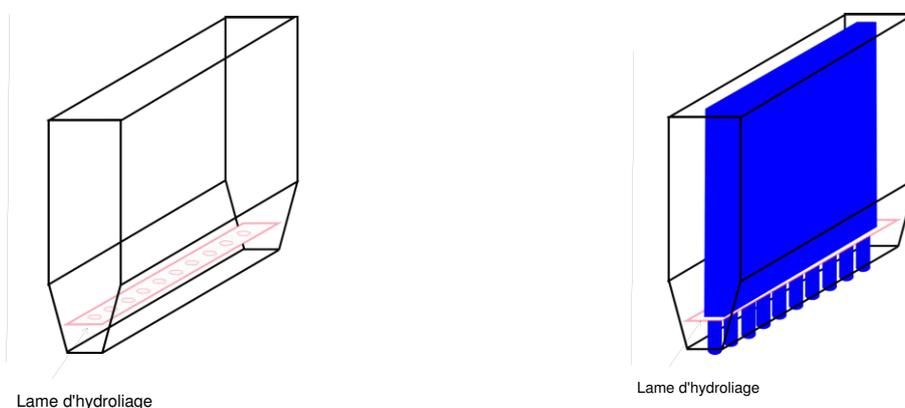


Figure 3-3 – Formation des jets d'eau par une lame d'hydroliage à l'intérieur d'un injecteur

Dans un but de fracturation, les jets d'eau servent respectivement à casser l'élément mer pour libérer les îles, et séparer les différents polymères entre eux. Le mécanisme exact de fracturation reste encore mal connu.

La Figure 3-4 illustre le procédé d'hydroliage du CETI. Il est, tout d'abord, composé de 4 injecteurs à hautes pressions (injecteur 11, 12, 21 et 21) qui servent à entremêler et hydrofracturer les filaments îles-en-mer. Puis, sous les injecteurs à hautes pressions, des tambours aspirants sont placés afin de capturer l'excédent d'eau. Enfin, en amont des injecteurs à hautes pressions, des injecteurs à basses pressions (injecteur pré-mouillage, pré-liage et iso-jet) sont disposés afin de préparer le média fibreux à être hydrolié et hydrofracturé en le mouillant et en le pré-liant.

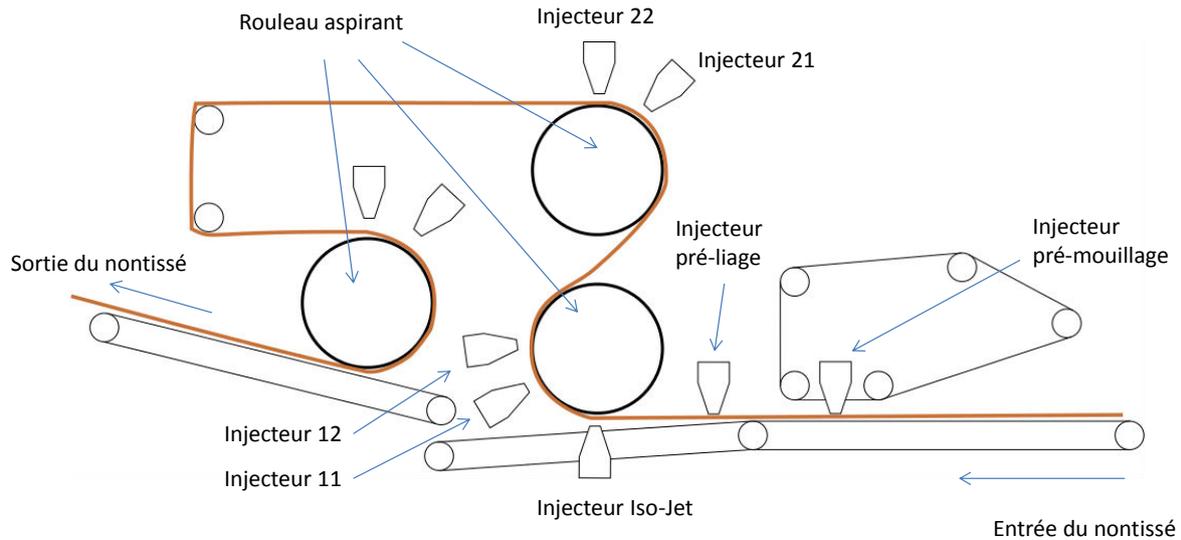


Figure 3-4 – Procédé d'hydroliage du CETI

### 3.1.3 METHODES DE CARACTERISATIONS DES MEDIAS FIBREUX

#### 3.1.3.1 Masse surfacique, épaisseur, compacité

Pour mesurer la masse surfacique, 5 échantillons circulaires de  $100 \text{ cm}^2$  prélevés aléatoirement à l'aide d'un James Heal et ont été pesés sur une balance Sartorius AX224 avec une précision de  $0,01 \text{ g}$ . Les 5 valeurs ont été moyennées pour déterminer la masse surfacique.

Pour mesurer l'épaisseur, 5 échantillons prélevés aléatoirement ont été placés entre une plaque de métal et un pied presseur de  $25 \text{ cm}^2$  exerçant une pression de  $0,1 \text{ kPa}$ . Après un temps de contact de 10 secondes, la distance entre la plaque et le pied presseur est mesurée. Les 5 valeurs sont alors moyennées pour déterminer l'épaisseur du média.

La compacité est déterminée à partir de la masse volumique des polymères à température ambiante l'échantillon, de l'épaisseur et de la masse surfacique du média selon l'équation (1-1).

#### 3.1.3.2 Perméabilité

La perméabilité expérimentale d'un média a été calculée à partir de mesures de perte de charge sur un banc de filtration du LRGP (Figure 3-5). À l'aide d'un capteur de pressions différentielles positionné en amont et en aval du filtre, la perte de charge est mesurée  $10$  à  $100 \text{ L/min}$ . À partir des mesures de perte de charge et de la loi de Darcy (équation (1-6)), la perméabilité  $k$  est calculée.

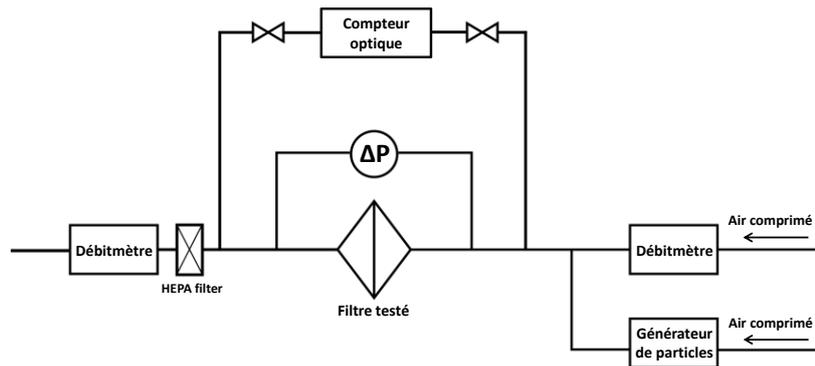


Figure 3-5 – Banc d'essai de filtration du LRGP utilisé pour la mesure de perméabilité

### 3.1.3.3 Diamètre des fibres

Le diamètre moyen des filaments îles-en-mer avant hydrofracturation est mesuré à l'aide d'un microscope optique Leica. Pour cela, 50 mesures de diamètre sont réalisées aléatoirement sur deux échantillons de 5x5 cm prélevés aléatoirement, soit 100 mesures pour chaque référence.

### 3.1.3.4 Qualité de fracturation des fibres

#### 3.1.3.4.1 Observation MEB

L'observation au Microscope Electronique à Balayage (MEB) constitue une méthode simple pour analyser qualitativement la fracturation (Ndaro et al. 2007; Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Pourdeyhimi & Fedorova 2013). L'inconvénient de cette méthode est le caractère qualitatif, il est difficile d'en déduire un taux de fracturation quantitatif. De plus, les images sont souvent en vue de dessus, ce qui donne une information de fracturation uniquement sur le dessus de l'échantillon et non sur la fracturation au centre de la structure.

Pour observer le centre de la structure, nous avons réalisé des coupes transversales. Pour cela, des échantillons ont été trempés dans l'azote liquide pendant 1 minute puis coupés à l'aide d'un rasoir.

Une fois la préparation réalisée, les échantillons sont disposés sur des plots pour être observés au MEB. Les observations ont été réalisées à l'aide d'un MEB de la marque JSM 6490LV de la société JEOL au LRGP.

#### 3.1.3.4.2 Estimation d'un taux de fracturation par méthode BET

La mesure ou l'estimation du taux de fracturation constitue une étape importante afin de comprendre d'une part les mécanismes liés à la fracturation et d'autre part mieux optimiser les paramètres procédés.

Pour cela, plusieurs méthodes ont été proposées dans la littérature pour estimer un taux de fracturation. Tout d'abord, Ndaro et al, 2007, proposent de réaliser des coupes en section du média puis de compter le nombre de filaments fracturés et de filaments non fracturés. Cette méthode demande un nombre important de coupes en section et nécessite de faire l'hypothèse que les échantillons prélevés soient représentatifs.

Une autre méthode dite perméamétrique consiste à utiliser les propriétés d'écoulement de l'air pour en déduire un diamètre équivalent qui sert de point de comparaison par rapport à une référence (Suvari et al. 2013).

Dans le cadre de la thèse, nous avons utilisé une méthode qui s'appuie sur la mesure de la surface spécifique. En effet, un taux de fracturation correspond à la quantité d'îles libérées dans la structure spunbond îles-en-mer après hydrofracturation. Par conséquent, plus il y a d'îles libérées et plus la surface spécifique est élevée ; il y a donc une relation entre la surface spécifique et le taux de fracturation. Pour estimer un taux de fracturation à partir de la mesure de la surface spécifique, nous avons considéré trois informations : la surface spécifique de l'échantillon  $S_{mesurée}$ , la surface spécifique lorsqu'il n'y a aucune fracturation  $S_{min}$  et la surface spécifique lorsque la fracturation est complète  $S_{max}$ . En supposant une relation linéaire entre le taux de fracturation et la surface spécifique, l'estimation du taux de fracturation se calcule selon l'équation (3-1).

$$\text{Taux de fracturation par surface spécifique (\%)} = \frac{S_{mesurée} - S_{min}}{S_{max} - S_{min}} \quad (3-1)$$

Dans le cas de médias fibreux, la surface spécifique peut être déterminée à partir d'une mesure reposant sur l'adsorption à l'aide d'un dispositif BET. Pour rappel, l'adsorption est un phénomène où des molécules gazeuses ou liquides (adsorbat) s'adsorbent à la surface d'un échantillon solide (adsorbant). Dans le cas de l'adsorption physique ou physisorption, un équilibre se crée entre la quantité de molécules adsorbées sur l'échantillon et la quantité de molécules non fixées sur l'échantillon. Cet équilibre est fonction de la pression et de la température du milieu.

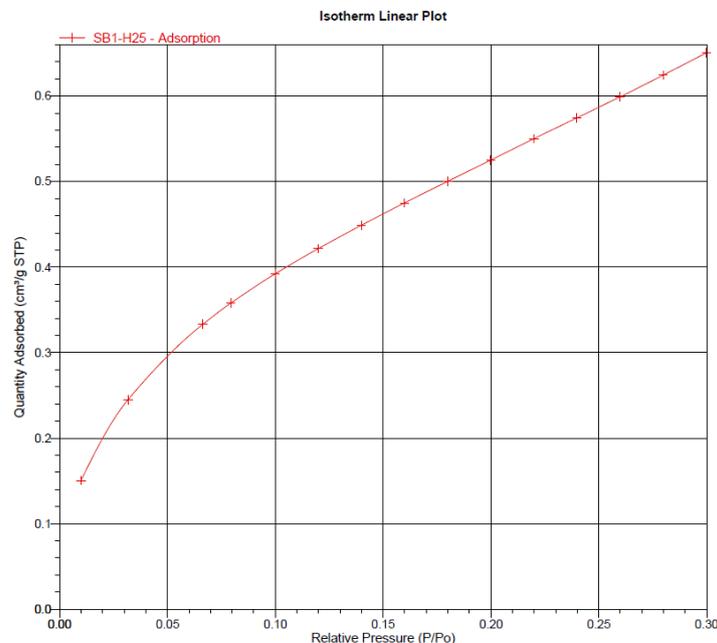


Figure 3-6 – Exemple d'isotherme de sorption d'un échantillon spunbond îles-en-mer fracturé par hydroliage

La mesure de la surface spécifique s'appuie sur les isothermes de sorption. Elles représentent la quantité de molécules fixées à la surface d'un échantillon en fonction de la pression partielle des molécules (Figure 3-6) pour une molécule (adsorbat) et une température données. À partir de l'isotherme de sorption et d'un modèle d'adsorption comme le modèle BET (Brunauer, Emmett et Teller), il est possible d'identifier la quantité de molécules adsorbées lorsque celles-ci forment une monocouche qui recouvre l'ensemble de la surface de l'échantillon (Figure 3-7). La surface spécifique de l'échantillon correspond alors à la surface occupée par les molécules adsorbées divisée par la masse de l'échantillon (Rouquerol & Luciani 2003).

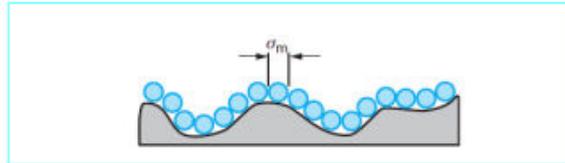


Figure 3-7 – Monocouche de molécules adsorbées sur la surface d'un échantillon (Rouquerol & Luciani 2003).

La mesure de la surface spécifique a été réalisée à l'aide d'appareil Tristar II Plus de Micromeritics. Avant la mesure, les échantillons ont été dégazés à 80°C pendant 24h. L'isotherme de sorption avec de l'azote à 77 K a été réalisée à l'aide de 10 mesures à des pressions relatives d'équilibre partielles  $p/p_0$  comprises entre 0 et 0,3.

La surface spécifique minimum correspond au cas où il n'y a pas de fracturation et se calcule directement à partir du diamètre des filaments îles-en-mer comme à l'équation (1-4).

La surface spécifique maximum correspond au cas où la fracturation est complète. Comme nous n'avons pas d'information sur les mécanismes exacts de l'hydrofracturation, nous ne savons pas sous quelle forme est la mer. Pour calculer la surface spécifique maximum, il faut alors faire une hypothèse sur la fracturation de la mer.

Dans le cadre de cette étude, nous considérons que la mer se fracture selon le schéma de la Figure 3-8 et que les îles sont totalement libres dans la structure. La surface maximum théorique s'obtient en sommant la surface spécifique de la mer fracturée et la surface spécifiques des îles libérées, équation (3-2).

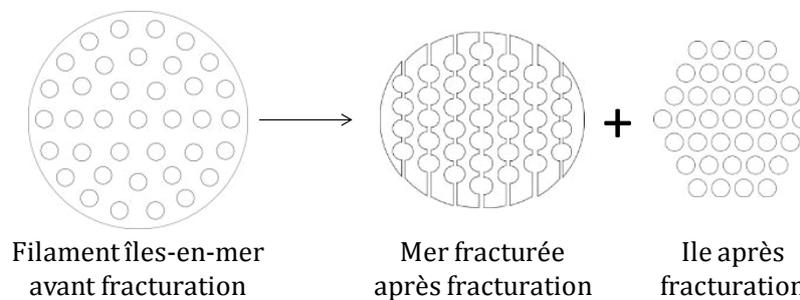


Figure 3-8 – Schéma de la fracturation des fibres îles-en-mer

Cette méthode possède plusieurs inconvénients. Par exemple, elle ne prend pas en compte les points de contact entre les fibres qui peuvent influencer la surface spécifique totale. En effet, bien que la surface des points de contact entre les fibres soit relativement très limitée au vue de la porosité très élevée des structures fibreuses (environ 90%), cette hypothèse reste discutable. De plus, la méthode comporte des incertitudes liées aux choix du modèle (Langmuir, BET 1 point, BET 3 points...) ou des points expérimentaux. Néanmoins, en respectant les critères et les recommandations pour le choix des modèles et des points expérimentaux (Rouquerol & Luciani 2003), il est possible de comparer les échantillons d'une même série comme dans notre cas et constitue une première approximation.

$$\text{Surface spécifique maximum } S_{s_{max}} \left( \frac{m^2}{g} \right) = \frac{\text{Surface îles} + \text{surface mer fracturée}}{\text{Masse du filament bicomposant}} \quad (3-2)$$

## 3.2 ETUDE DE LA QUALITE D'HYDROFRACTURATION DES FIBRES ET DU MEDIA FIBREUX

### 3.2.1 OBJECTIFS DES ESSAIS

L'objectif final est de pouvoir produire un média fibreux composé de filaments îles-en-mer avec les îles les plus fines possible puis de l'hydrofracturer afin d'extraire le maximum d'îles. Cet objectif peut être décomposé en deux parties. Tout d'abord, la première partie consiste à comprendre le mécanisme d'hydrofracturation et de mettre en avant les paramètres clés pour pouvoir ensuite optimiser l'hydrofracturation et extraire un maximum d'îles. La deuxième partie se concentre sur la production des îles les plus fines possible en contrôlant la qualité du média et ses propriétés de filtration.

#### 3.2.1.1 Influence des paramètres sur l'hydrofracturation

L'hydrofracturation correspond à la rupture de l'élément mer puis à la séparation des îles de la mer à l'aide de fins jets d'eau à haute pression. En première approche, les paramètres importants jouant un rôle sont la pression des jets d'eau, le ratio îles/mer ainsi que le couple de polymères. En effet, l'augmentation des jets d'eau va augmenter la contrainte subie par le filament et donc augmenter la rupture de la mer. Après la fracturation de la mer, les jets d'eau aideront à la séparation des îles et de la mer.

Ensuite, selon la quantité de polymère mer (ratio île/mer) et le type de polymère mer, les contraintes ou l'énergie nécessaire pour générer la fracturation ne seront pas les mêmes. Enfin, la séparation entre les îles et la mer après la fracturation de la mer est liée à l'adhésion entre les deux polymères et va donc influencer le résultat de l'hydrofracturation. Dans la suite, nous allons détailler nos choix de polymères, de ratio îles/mer et des pressions des jets d'eau.

##### 3.2.1.1.1 Le choix du couple de polymères

Le choix des polymères est peu détaillé dans le cadre d'étude de la fracturation, mais il existe des travaux sur la formation des filaments îles-en-mer qui donnent des pistes pour le choix de ces matériaux (Fedorova 2006; Durany et al. 2009; Anantharamaiah et al. 2008).

Tout d'abord, nous avons identifié que pour favoriser l'hydrofracturation, il faut que la mer puisse se fracturer et que les îles se séparent de la mer.

Un autre aspect est la filabilité du couple îles/mer. En effet, avant de pouvoir hydrofracturer un filament îles-en-mer, le couple de polymères choisi doit pouvoir être filable et former des filaments îles-en-mer avec une morphologie correcte.

En résumé, le couple de polymères doit répondre à trois critères :

- Les polymères doivent être filables ensemble et garantir une morphologie correcte
- Le polymère « mer » doit pouvoir se fracturer sous l'effet des jets d'eau
- Les polymères doivent pouvoir se séparer facilement

Afin de garantir un filage optimal, Fedorova, en 2006, a étudié et développé des fibres et des structures spunbond îles-en-mer. Elle a mis en œuvre différents polymères : PA6, PP et PET pour les îles et du PLA, PE basse densité, AQ55 et co-PET pour la mer. Ensuite, elle a montré que pour avoir une bonne filabilité, il faut répondre à certains critères rhéologiques comme une viscosité apparente similaire, une température de solidification et des propriétés mécaniques d'étirage proches. Des études sur les propriétés mécaniques, et de température de solidification lui ont permis de sélectionner deux couples de polymères : le couple PA6/PE et PA6/PLA. En effet, le couple île/mer I/S PA6/PE possède une interface entre polymères jugée forte alors que le couple PA6/PLA offre des propriétés mécaniques importantes. Elle note que le couple PP/PLA semble présenter une interface faible.

Des études plus générales sur la formation de filaments bicomposants ont été réalisées même si elles ne mentionnent pas directement la morphologie îles-en-mer. Ainsi, Dooley et Rudolph, 2003, ont étudié l'influence du rapport de viscosité entre deux polymères (polyéthylène) sur la morphologie. Par cette étude, ils montrent des effets d'encapsulation : le polymère le moins visqueux enrobe le polymère le plus visqueux. Ainsi, l'interface se déforme lorsque le ratio de viscosité des deux polymères est très différent (Dooley & Rudolph 2003). Ayad *et al.*, 2017, étudient ce phénomène sur un procédé de filage side-by-side et observent le même phénomène d'encapsulation.

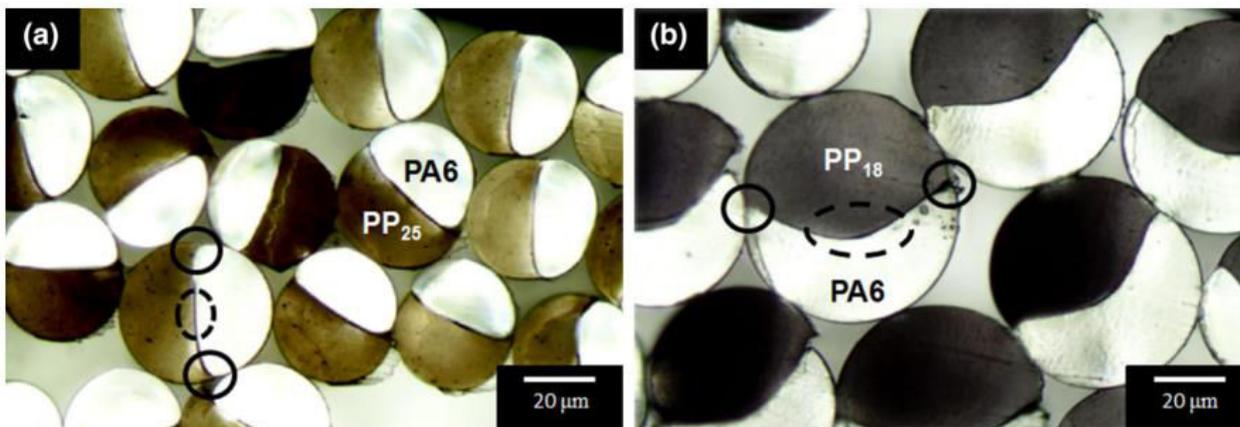


Figure 3-9 – Phénomène d'encapsulation (Ayad et al. 2016)

Arvidson, en 2011, dans le cadre de sa thèse étudie les différences entre le filage bicomposant classique par voie fondue (filament melt-spinning) et le filage bicomposant par voie spunbond. Elle montre, notamment, que les contraintes d'étirage subies lors de ces procédés sont différentes. Cela peut provoquer des phases de cristallisation intermédiaires et permet donc d'obtenir des propriétés différentes. Par conséquent, la transposition des résultats des études en filages bicomposants vers le procédé spunbond bicomposant doit être nuancé.

Le deuxième critère est la capacité du polymère mer à se fracturer sous l'effet des jets d'eau à haute pression.

Dans la littérature, plusieurs polymères mer ont été utilisés pour la fracturation :

- Le polyéthylène (PE) (Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Pourdeyhimi & Fedorova 2013)
- Un co-polymère de polytéréphtalate d'éthylène (Co-PET) (Ndaro et al. 2007)
- Le polytéréphtalate d'éthylène (PET) (Durany et al. 2009)

Anantharamaiah et al. ont utilisé le PE, car les chaînes moléculaires sont peu étirées et peu orientées, ce qui faciliterait la fracturation. Ndaro et al. ont proposé d'utiliser des co-PET spécialement conçus pour être fracturables. Durany et al. ont utilisé le PET afin de modifier les propriétés mécaniques finales du média.

À travers ces études, la justification du choix du polymère mer se résume à une faible résistance mécanique, mais ce terme a plusieurs significations : une faible résistance à une contrainte longue et prolongée, une faible résistance à une contrainte en flexion ou en traction, une faible résistance à un choc (contrainte importante pendant un temps très court).

Afin de sélectionner les polymères « mer » susceptibles de se fracturer, nous avons comparé les performances théoriques des différents polymères utilisés en filage (PE basse densité, PP, PET, PA6 et PLA). La résistance à la rupture en traction, le module de Young, l'allongement à la rupture et la résistance au choc Izod sont regroupés dans le Tableau 3-1. Une première hypothèse consiste à assimiler l'hydrofracturation à un mécanisme de traction. Ainsi, sélectionner le PE semble intéressant, car il présente la résistance en traction la plus faible. Ce choix a été fait de nombreuses fois dans la littérature.

Cependant, on peut noter que l'hydrofracturation se fait sous de fortes contraintes avec des pressions pouvant atteindre 300 bars, et sur un temps très court avec une vitesse de tapis de 30 m/min : c'est donc un phénomène de choc. Ainsi, les propriétés mécaniques telles que le module d'élasticité et l'allongement à la rupture qui représentent l'élasticité du matériau, ou encore la résistance à un choc semblent plus adaptées. En effet, d'après la théorie de la mécanique de la rupture, la résistance à un choc est proportionnelle au module élastique du matériau : moins un matériau est élastique (rigide) et moins il est résistant au choc (cassant) à l'image du verre (Mao et al. 2006; Pritchard et al. 2000; Crompton 2012).

Tableau 3-1 – Propriétés mécaniques de différents polymères usuels en filage (Crompton 2012; Wyart 2014)

	Résistance à la rupture en traction (MPa)	Module de Young en traction (GPa)	Allongement à la rupture (%)	Résistance au choc (Izod), kJ/m, éprouvette entaillée à 23°C
PE basse densité linéaire*	10	0,25	400	1,064
PP	26	2	80	0,05
PET	55	2,3	300	0,02
PA6	40	1	60	0,25
PLA	48	3,5	4,25	0,00016

Pour vérifier cette nouvelle hypothèse, nous avons choisi d'utiliser le PA6 et le PLA en tant qu'élément mer. En effet, le module de Young du PA6 (1 GPa) et la résistance au choc du PA6 (0,25 kJ/m) sont plus élevés que le module de Young du PE (0,25 GPa) et la résistance au choc du PE (1,064 kJ/m). Puis, le PLA présente une rigidité encore plus importante avec un module de Young de 3,5 GPa et une résistance au choc de 0,00016 kJ/m. Ainsi, étudier l'hydrofracturation de ces deux polymères permettra de déterminer si l'hydrofracturation est assimilable à un choc et si un matériau avec une résistance au choc faible est plus intéressant qu'un matériau avec une faible résistance à la traction.

Après l'hydrofracturation de la mer, les îles et la mer doivent se détacher. Pour cela, l'adhésion entre les deux polymères doit être minimisée. Durany et al, 2009, conseillent d'utiliser une association telle que celle utilisée pour le produit Evolon © c'est-à-dire une association polyester/polyamide 6, car elle crée une interface faible susceptible de favoriser la fracturation. Cependant, l'étude de l'adhésion est fortement liée à la filabilité des filaments. Dans le cadre de la thèse, nous nous sommes concentrés sur les mécanismes d'hydrofracturation de la mer plutôt que sur l'adhésion entre les îles et la mer. Ce travail a été réalisé par Esma Ayad, doctorante, dans le cadre du projet FILAIRCO. Elle a entre autres étudié l'influence des propriétés rhéologiques des polymères sur la morphologie des fibres bicomposantes noyau-écorce et îles-en-mer.

Pour le choix du couple de polymères, nous avons choisi sélectionné les couples I/S îles/mer de polymères suivants :

- I/S PA6/PE, car il a été utilisé dans de nombreuses études (Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Pourdeyhimi & Fedorova 2013).
- I/S PE/PA6, car cela nous permet d'évaluer à la fois la qualité de la fracturation de la mer et la séparation des îles de la mer (adhésion à l'interface île-mer).
- I/S PP/PLA, car cette association a déjà été réalisée et présentée de bonnes morphologies, et que le PP est un bon candidat pour la filtration (Fedorova 2006; Arvidson et al. 2012).

### 3.2.1.2 Ratio îles/mer

Le choix du ratio îles/mer s'avère être un compromis entre la quantité de mer à fracturer et la finesse des îles formées. A priori, plus la quantité de polymères mers est importante et moins la mer sera facile à fracturer et plus il sera difficile d'extraire les îles de l'élément mer. Cette observation se retrouve dans les études précédentes où le ratio îles/mer est proche du ratio 75/25 (Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Pourdeyhimi & Fedorova 2013). Cependant, l'influence du ratio îles/mer sur l'hydrofracturation n'a pas été étudiée. Ainsi, nous avons choisi d'explorer la gamme des ratios îles/mer en fabriquant des structures avec 3 ratios îles/mer différents (75/25, 50/50, 25/75). Pour des raisons de commodité, nous avons travaillé avec des ratios îles/mer en masse. Cela nous permettra de déterminer s'il existe une fraction de mer maximum au-delà de laquelle l'énergie d'hydrofracturation reste limitée ou si au contraire l'énergie d'hydrofracturation est importante quel que soit le choix du ratio île/mer.

### 3.2.1.3 Pression des jets d'eau

Les jets d'eau appliquent une force continue sur les filaments îles-en-mer qui visent à rompre la mer et à libérer les îles. Ainsi, lorsque l'on augmente la pression, la force appliquée sur les fibres augmente, ce qui potentiellement accroît l'hydrofracturation. Cependant, l'augmentation ne peut être infinie, car à partir d'une pression critique, le média se déstructure. L'objectif est donc d'étudier l'influence de la pression des jets à la fois sur l'hydrofracturation, mais aussi sur les caractéristiques de structures du voile. De cette manière, il sera possible de déterminer la pression minimum pour atteindre une hydrofracturation « acceptable », mais, aussi la pression maximum avant que le média ne se déstructure.

Dans la suite, nous utiliserons la pression des jets comme indicateur bien que d'autres indicateurs puissent être utilisés comme la force d'impact et l'énergie spécifique d'hydroliage.

La force d'impact  $F_{impact}$  correspond à la force exercée sur la fibre, elle se calcule à partir de la pression des jets et au diamètre des trous de la lame d'hydroliage (équation (3-3)). Comme nous allons utiliser une même lame d'hydroliage avec un diamètre de trous constant, la force exercée sera uniquement liée à la pression des jets d'eau.

$$F_{impact} = \frac{\pi}{2} * d_{buse}^2 * P_{jets} \quad (3-3)$$

Avec :

$d_{buse}$  : Diamètre des trous des lames d'hydroliage (m)

$P_{jets}$  : Pression des jets (Pa)

Dans le cas où nous souhaitons comparer des échantillons de masses différentes ou hydrofracturés dans des conditions différentes (nombre de passages dans le procédé différent, lame d'hydroliage différente, pression d'injecteur différent), on peut utiliser l'énergie spécifique d'hydroliage qui correspond à l'énergie dépensée par unité de masse. Celle-ci s'exprime par la relation (3-4) suivante :

$$K = \frac{1}{bM_sV_b} * \frac{C_d\pi\sqrt{2}}{4\sqrt{\rho_w}} * \sum_{i=1}^M n_i l_i d_{buse,i}^2 P_{jets,i}^{3/2} \quad (3-4)$$

Avec :

$K$  : Energie spécifique d'hydroliage (J/kg)

$b$  : Largeur du voile (m)

$M_s$  : Masse surfacique du voile (kg/m<sup>2</sup>)

$V_b$  : Vitesse du tapis (m/s)

$P_{jets,i}$  : Pression du jet d'eau de l'injecteur  $i$  (Pa)

$C_d$  : Coefficient de décharge des lames d'hydroliage (-)

$\rho_w$  : Masse volumique de l'eau (kg/m<sup>3</sup>)

$n_i$  : Nombre de jets d'eau par injecteur (m)

$l_i$  : Largeur de l'injecteur  $i$  (m)

$d_{buse,i}$  : Diamètre des trous des lames d'hydroliage pour l'injecteur  $i$  (m)

$M$  : Nombre d'injecteurs

L'énergie spécifique des jets d'eau a été sans doute utilisée dans les études précédentes, car l'hydrofracturation a été réalisée avec des pressions d'injecteurs différentes, un nombre d'injecteurs et un nombre de passages différents, ce qui peut conduire à des résultats de qualité de voile différents (Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Pourdeyhimi & Fedorova 2013). Cependant, pour une même énergie, le nombre d'injecteurs ainsi que les pressions des jets peuvent être différents. Dans la suite, nous hydrofracturons nos médias à fibres îles-en-mer dans des conditions similaires c'est-à-dire 1 passage sous 4 injecteurs à hautes pressions de même pression avec une même lame d'hydroliage et des médias de masse surfacique relativement similaires. Cela nous permettra de comparer l'influence de l'hydroliage en utilisant uniquement la pression d'hydroliage.

Pour pouvoir comparer les échantillons, les uns par rapport aux autres, nous avons visé une masse surfacique de 50 g/m<sup>2</sup> pour chaque structure produite. Les études précédentes utilisent des médias de masse surfaciques de 100 g/m<sup>2</sup> (Ndaro et al. 2007) et 150 g/m<sup>2</sup> (Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011), car les auteurs visent des applications durables. Dans notre cas, nous avons choisi une masse surfacique plus faible de 50 g/m<sup>2</sup> afin de notamment nous rapprocher des médias utilisés en filtration de l'air tels que les masques respiratoires. Il est à noter que les conditions de fracturation des fibres sont ainsi plus délicates car la qualité du voile sera plus vite affectée par une pression de jets d'eau élevée.

#### 3.2.1.4 Obtention des îles les plus fines

En supposant un filament îles-en-mer cylindrique, un diamètre de fibre constant, une répartition de la matière uniforme et un diamètre constant des îles, le diamètre des îles dépend alors seulement de 3 paramètres (Fedorova, 2006) :

- le diamètre du filament îles-en-mer avant fracturation
- le ratio île/mer
- le nombre d'îles.

Il s'estiment selon l'équation (3-5) suivante :

$$\text{Diamètre des îles} = \sqrt{\frac{\text{Ratio île/mer en masse}}{\text{Nombre d'îles}}} * \text{Diamètre des filaments } (d_f) \quad (3-5)$$

À partir de l'équation (3-5), nous pouvons simuler la taille des filaments selon plusieurs conditions. La Figure 3-10 représente le diamètre des îles en fonction du nombre d'îles pour différents ratios île/mer et diamètre de filaments.

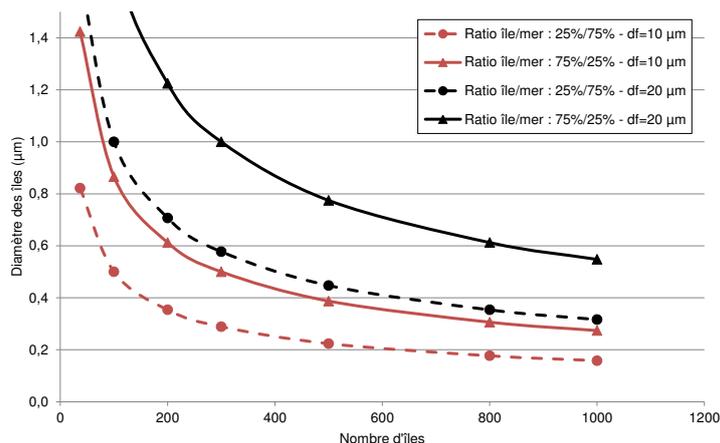


Figure 3-10 – Simulation du diamètres des îles en fonction du nombre d’îles, du diamètre du filament ( $d_f$ ) et du ratio île/mer

Cette simulation permet de montrer les 3 possibilités de réduction du diamètre des îles :

- Réduire le ratio île/mer
- Diminuer le diamètre des filaments
- Augmenter le nombre d’îles

La qualité d’hydrofracturation et l’obtention d’îles fines ne sont pas indépendantes. En effet, le ratio île/mer impacte à la fois les mécanismes d’hydrofracturation et la diminution du diamètre d’îles.

Dans nos travaux, nous nous sommes uniquement focalisés sur l’étude du ratio îles/mer.

L’étude de l’influence du nombre d’îles nécessite l’utilisation de filières bicomposantes îles-en-mer spécifiques. Cette étude pourrait constituer une étape suivante pour le projet (Durany et al. 2009).

De même, l’optimisation du diamètre des filaments aurait pu être envisagée, mais nous avons choisi de privilégier l’étude du couple de polymères avec une morphologie correcte. Ainsi, nous nous sommes fixés un diamètre de filament de 15 µm comme objectif.

### 3.2.1.5 Bilan des paramètres sélectionnés et caractéristiques étudiées

La Figure 3-11 regroupe les différents paramètres qui peuvent jouer un rôle dans l’hydrofracturation des filaments îles-en-mer ou permettre de créer les îles les plus fines possible. Parmi ces différents paramètres, nous avons choisi trois couples de polymères îles/mer (PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA), 3 ratios en masse îles/mer (25/75-50/50-75-25) et différentes pressions d’hydroliage (50 à 300 bars). Parmi les constantes de notre étude, nous avons fixé une masse surfacique de 50 g/m<sup>2</sup> et un diamètre de filaments de 15 µm.

Le choix de ces paramètres est lié à des questions auxquelles nous souhaitons apporter des réponses.

Pour rappel :

- Le polymère mer doit-il être rigide, cassant et sensible au choc ou plutôt avoir une faible résistance en traction pour favoriser l'hydrofracturation ?
- Existe-t-il un seuil ou un ratio île/mer critique au-delà duquel l'hydrofracturation n'a pas lieu ou au contraire l'hydrofracturation a lieu, peu importe le ratio île/mer ?
- Quelles sont les pressions des jets minimum permettant une hydrofracturation acceptable ?
- Quelles sont les pressions des jets maximum permettant une hydrofracturation importante sans nuire à l'intégrité et aux caractéristiques du média fibreux ?

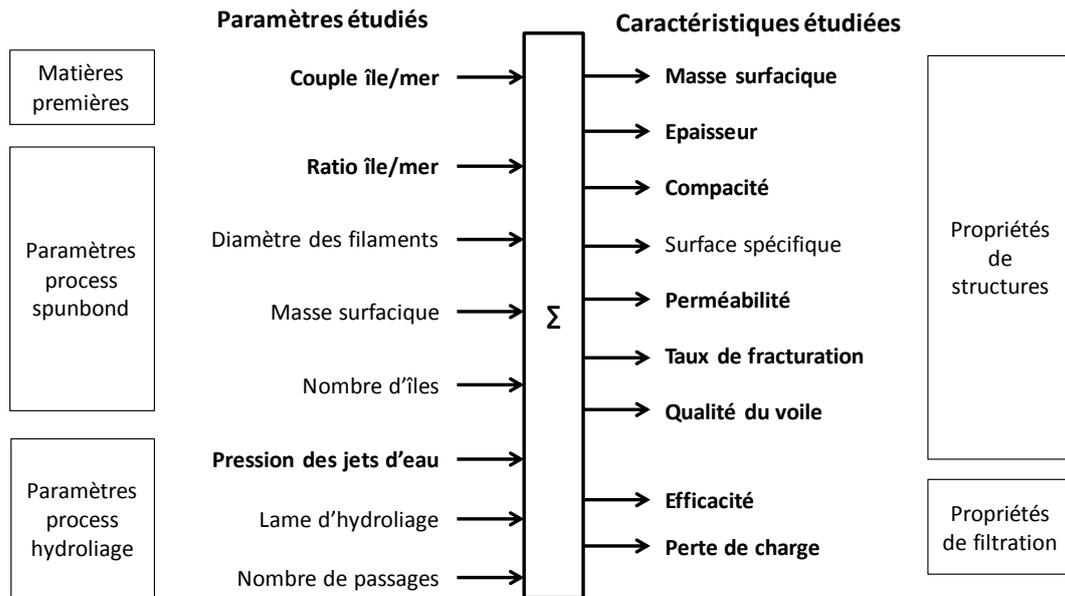


Figure 3-11 – Relation propriété/structure/procédé/polymère pour les structures spunbond îles-en-mer hydrofracturées

Pour comprendre les relations entre ces paramètres du procédé et l'hydrofracturation, nous caractérisons l'hydrofracturation à l'aide d'observation MEB et estimerons le taux de fracturation. En parallèle, nous étudierons l'impact des jets d'eau sur les caractéristiques du média telles que la masse surfacique, l'épaisseur, la compacité et la perméabilité. Enfin, nous évaluerons la qualité du voile.

### 3.2.2 POLYMERES UTILISES ET CONDITIONS DES ESSAIS

Dans cette partie, nous présenterons les protocoles utilisés pour caractériser nos échantillons, les caractéristiques des médias spunbond îles-en-mer utilisés ainsi que les conditions d'hydrofracturation.

### 3.2.2.1 Production des structures et fracturation par hydroliage

#### 3.2.2.1.1 Production des médias spunbond

Les caractéristiques et les références des polymères utilisés sont détaillées dans le Tableau 3-2.

Tableau 3-2 – Caractéristiques des polymères

Polymère	Référence	Fournisseur	Masse volumique $\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	Température de fusion T <sub>m</sub> (°C)	Melt flow rate MFR (g/10 min)
PA6	Radillon S 24E 100NAT	Radici	1,14	220	N.S.
PE	ASPUN 6834	Dow chemical	0,95	130	17
PP	Lumicene MR2001	Total	0,905	151	25
PLA	6252D	Natureworks	1,24	160-170	70-85

N.S. : Non spécifié

Les structures ont été produites au Centre Européen des Textiles Innovants (CETI) à l'aide d'un procédé spunbond bicomposant Hills © équipé d'une filière îles-en-mer avec 37 îles. Afin de maintenir une cohésion entre les filaments avant l'hydroliage, les structures spunbond bicomposantes îles-en-mer sont pré-calandrées par des rouleaux à pointe à une pression de 30 N/mm et une température de 150°C pour le couple PA6/PE et PE/PA6 et 120°C pour le couple PP/PLA.

Le Tableau 3-3 résume les structures spunbond réalisées et qui ont été ensuite hydrofracturées.

Tableau 3-3 – Caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer avant hydrofracturation

Référence	Polymère île	Poly-mère mer	Ratio % île/mer en masse	Nombre d'îles	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Épaisseur (mm)	Compacité (%)	Diamètre des filaments (µm)	Diamètre des îles (µm)
PA6/PE-25I	PA6	PE			56	0,39	15%	15,1	1,2
PE/PA6-25I	PE	PA6	25/75		42	0,26	15%	15,3	1,3
PP/PLA-25I	PP	PLA			48	0,54	9%	15,1	1,2
PA6/PE-50I	PA6	PE			64	0,42	14%	14,9	1,7
PA6/PE-50I	PE	PA6	50/50	37	42	0,30	14%	15,5	1,9
PA6/PE-50I	PP	PLA			50	0,44	11%	15,1	1,8
PA6/PE-75I	PA6	PE			52	0,32	15%	14,6	2,2
PE/PA6-75I	PE	PA6	75/25		45	0,31	15%	15,4	2,2
PP/PLA-75I	PP	PLA			49	0,50	9%	15,1	2,2

Comme mentionné précédemment, nous avons créé des médias spunbond îles-en-mer pour les couples îles/mer PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA pour 3 ratios îles/mer (25/75-50/50-75/25), nous avons visé une masse surfacique de 50 g/m<sup>2</sup> et un diamètre de 15 µm. Pour l'ensemble des structures, les diamètres moyens obtenus sont proches de 15 µm. Les masses surfaciques mesurées varient entre 42 et 64 g/m<sup>2</sup>.

Les médias spunbond îles-en-mer I/S PA6/PE ont les masses surfaciques les plus élevées (50 à 64 g/m<sup>2</sup>), les médias îles-en-mer I/S PE/PA6 ont une masse surfacique plus faible (environ 42 g/m<sup>2</sup>) et les médias îles-en-mer I/S PP/PLA ont des masses surfaciques proches de 50 g/m<sup>2</sup>. On

note aussi une compacité plus faible comprise entre 9 et 11% des médias îles-en-mer I/S PP/PLA par rapport à une compacité comprise entre 14 et 15% pour les médias îles-en-mer I/S PA6/PE et PE/PA6.

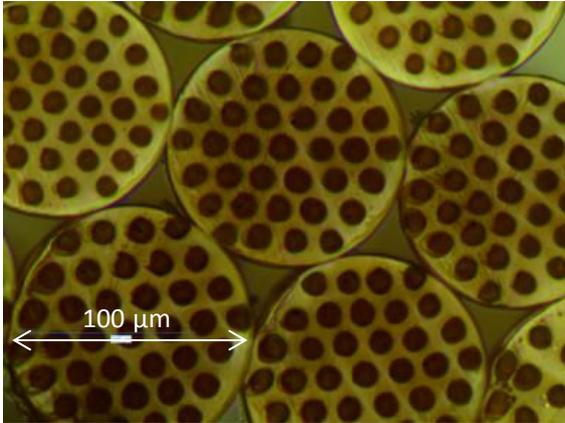


Figure 3-12 - Couple transversale d'un filament îles-en-mer I/S PA6/PE 251 composé de 37 îles avant étirage

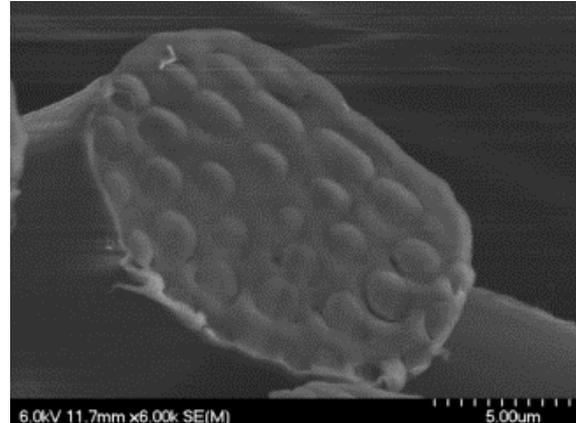
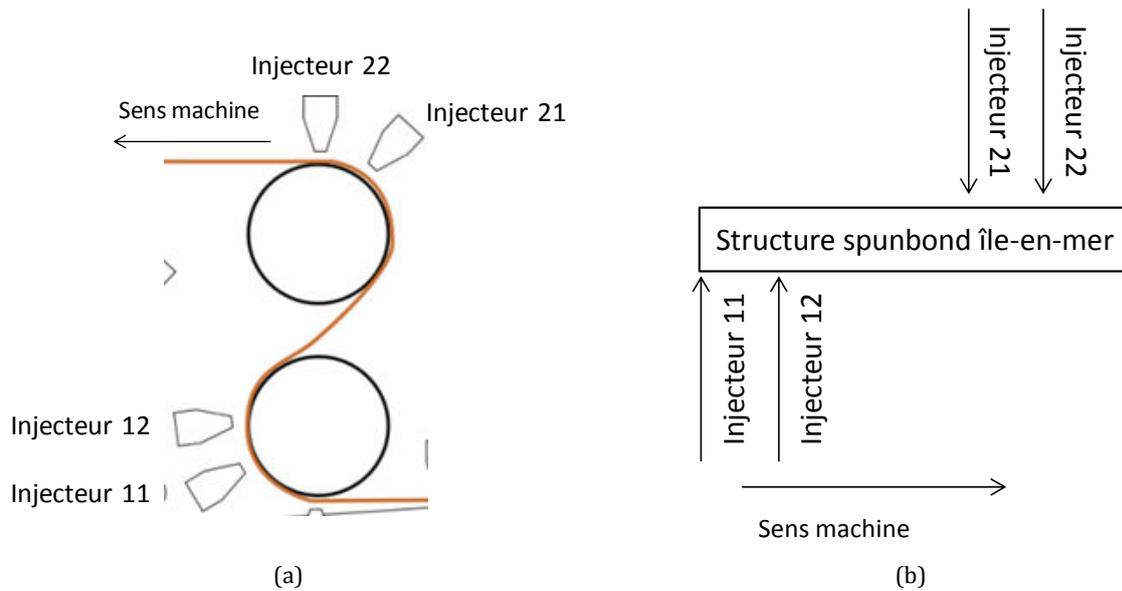


Figure 3-13 - Couple transversale d'un filament îles-en-mer I/S PA6/PE 501 composé de 37 îles après étirage

La Figure 3-12 et la Figure 3-13 présentent deux filaments îles-en-mer vus en coupe, obtenus par le procédé spunbond équipé d'une filière îles-en-mer avec 37 îles, prise avant et après étirage. Les deux phases, île et mer, sont bien visibles ainsi que les 37 îles.

### 3.2.2.1.2 Hydrofracturation par le procédé d'hydroliage

Les structures spunbond îles-en-mer sont ensuite hydrofracturées au Centre Européen des Textiles Innovants (CETI) à l'aide d'un procédé d'hydroliage Perfojet © d'Andritz. Pour cela les structures spunbond passent sous deux injecteurs basses pressions qui assurent un pré mouillage homogène puis sous 4 injecteurs hautes pressions (injecteur 11, 12, 21 et 22) qui génèrent la fracturation des filaments îles-en-mer. La Figure 3-14 représente la position des injecteurs haute pression par rapport à la structure spunbond. Deux injecteurs sont placés sur la face endroit et deux injecteurs sont placés sur la face envers. Les injecteurs d'hydroliage sont équipés de lames d'hydroliage avec une seule rangée de trous de 140 µm de diamètre, espacés de 0,6 mm. Les structures spunbond îles-en-mer sont hydrofracturées à des pressions comprises entre 50 et 300 bars selon la résistance des structures spunbond à une vitesse de 10 m/min. Pour chaque échantillon, les 4 injecteurs sont réglés avec la même pression pour les jets d'eau.



(a) (b)  
 Figure 3-14 – Positionnement des injecteurs par rapport aux structures spunbond  
 (a) Schéma du passage de la structure spunbond par le process d'hydroliage  
 (b) schéma de la position des injecteurs par rapport à la structure spunbond

Le Tableau 3-4 regroupe les conditions d'hydrofracturation des structures spunbond îles-en-mer. Les caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer fracturées par hydroliage sont résumées dans le Tableau 3-5. Il détaille la masse surfacique, l'épaisseur, la compacité et l'estimation du taux de fracturation via la mesure de la surface spécifique par technique BET.

Tableau 3-4 – Conditions d'hydrofracturation des structures spunbond îles-en-mer

Référence Île/mer	Pression injecteur 11 (bars)	Pression injecteur 12 (bars)	Pression injecteur 21 (bars)	Pression injecteur 22 (bars)
PA6/PE 25/75	50	50	50	50
	150	150	150	150
	250	250	250	250
PA6/PE 50/50	100	100	100	100
	200	200	200	200
	300	300	300	300
PA6/PE 75/25	50	50	50	50
	150	150	150	150
	250	250	250	250
	300	300	300	300
PE/PA6-25I	50	50	50	50
	100	100	100	100
	200	200	200	200
	250	250	250	250
	300	300	300	300
PE/PA6-50I	50	50	50	50
	100	100	100	100
	200	200	200	200
	250	250	250	250
PE/PA6-75I	50	50	50	50
	100	100	100	100
	200	200	200	200
	250	250	250	250
	300	300	300	300
PP/PLA-25I	50	50	50	50
	100	100	100	100
	200	200	200	200
	250	250	250	250
PP/PLA-50I	50	50	50	50
	100	100	100	100
	200	200	200	200
	250	250	250	250
PP/PLA-75I	50	50	50	50
	100	100	100	100
	200	200	200	200
	250	250	250	250

Tableau 3-5 – Caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer après fracturation

Référence	Pression des jets (bars)	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Épaisseur (mm)	Compacité (%)	Taux de fracturation BET (%)	Surface spécifique (m <sup>2</sup> /g)
PA6/PE-25I	50	57	0,44	13%	13%	0,50
	150	59	0,40	15%	15%	0,54
	250	66	0,38	18%	18%	0,60
PA6/PE-50I	100	66	0,59	11%	15%	0,59
	200	70	0,45	15%	28%	0,93
	300	71	0,42	16%	42%	1,26
PA6/PE-75I	50	54	0,39	13%	12%	0,58
	150	59	0,29	18%	30%	1,06
	250	61	0,27	20%	52%	1,66
	300	61	0,29	19%	62%	1,94
PE/PA6-25I	50	50	0,50	9%	16%	0,60
	100	48	0,44	10%	24%	0,74
	200	56	0,49	11%	/	
	250	56	0,49	11%	17%	0,62
	300	55	0,49	10%	23%	0,72
PE/PA6-50I	50	49	0,37	13%	9%	0,49
	100	52	0,37	13%	9%	0,50
	200	52	0,38	13%	22%	0,81
	250	53	0,38	13%	27%	0,93
	300	49	0,36	13%	40%	1,25
PE/PA6-75I	50	50	0,36	14%	11%	0,58
	100	45	0,33	14%	18%	0,79
	200	53	0,33	16%	44%	1,54
	250	50	0,33	15%	53%	1,80
	300	49	0,35	14%	54%	1,85
PP/PLA-25I	50	48	0,52	9%	9%	0,41
	100	50	0,56	9%	/	
	200	54	0,51	11%	25%	0,7
	250	51	0,46	11%	27%	0,75
PP/PLA-50I	50	49	0,54	9%	6%	0,39
	100	52	0,50	10%	18%	0,70
	200	56	0,45	12%	40%	1,25
	250	48	0,42	11%	50%	1,50
PP/PLA-75I	50	49	0,50	9%	26%	1,03
	100	50	0,42	10%	25%	1,00
	200	52	0,41	11%	54%	1,86
	250	50	0,45	10%	65%	2,18

### 3.2.3 ANALYSE DES RESULTATS DU PLAN D'EXPERIENCES

Après avoir détaillé la démarche de l'étude ainsi que les plans d'expériences réalisés, nous allons analyser l'influence du couple îles/mer, du ratio îles/mer et de la pression de jets sur l'hydrofracturation à travers des observations MEB et le taux de fracturation. Puis, nous allons étudier l'influence des jets d'eau haute pression sur les caractéristiques de structures hydrofracturées (masse surfacique, épaisseur, la compacité et la perméabilité). Ces analyses vont nous permettre de mieux comprendre les propriétés mécaniques du polymère mer qui favorise l'hydrofracturation, mais aussi de déterminer les conditions optimales (couple de polymère, ratio îles/mer, pression des jets) permettant d'obtenir une hydrofracturation acceptable et maximum pour une qualité de voile acceptable c'est-à-dire utilisable en tant que médias.

#### 3.2.3.1 Analyse de l'hydrofracturation des filaments îles-en-mer

##### 3.2.3.1.1 Visualisation de l'hydrofracturation par image MEB

Pour observer l'hydrofracturation des filaments îles-en-mer, nous avons réalisé des observations au MEB en vue de dessus et en section. La Figure 3-15 et la Figure 3-16 représentent deux images MEB de même grossissement en vue de dessus de médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés à des pressions respectives de 50 et 200 bars. À partir de ces deux images, nous pouvons visualiser l'hydrofracturation en comparant l'aspect des filaments sur chacune des images. Sur la Figure 3-15, les filaments îles-en-mer sont clairement identifiables alors que sur la Figure 3-16, on observe un mélange de fibrilles composées d'îles et de mer. Ces deux images montrent donc respectivement un média faiblement fracturé et fortement fracturé.

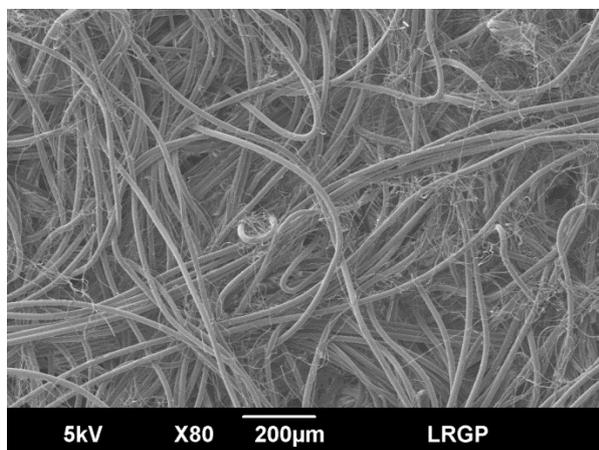


Figure 3-15 – Echantillon faiblement fracturé en vue de dessus (I/S PP/PLA I75 50 bars)

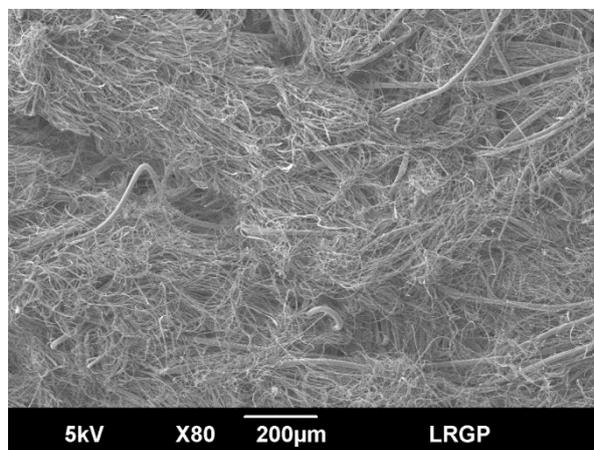


Figure 3-16 – Echantillon fortement fracturé en vue de dessus (I/S PP/PLA I75 200 bars)

Malgré le nombre important de filaments îles-en-mer fracturés à la Figure 3-16, il reste quelques filaments îles-en-mer non fracturés visibles. L'hydrofracturation n'est donc jamais complète, il reste toujours quelques filaments non fracturés. Ces observations sont similaires aux études de la littérature (Ndaro et al. 2007; Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011).

La Figure 3-17 (a) et (b) montrent différentes coupes en sections. Ce type d'observation permet d'évaluer l'uniformité de la fracturation au sein de l'échantillon. Les filaments au centre de l'échantillon sont moins fracturés que les filaments en surface. Cela peut s'expliquer par les jets d'eau qui fracturent les filaments en surface avant d'atteindre les filaments du centre. L'énergie transmise au centre de l'échantillon est alors plus faible que l'énergie transmise en surface d'où une fracturation moins importante au centre de l'échantillon.

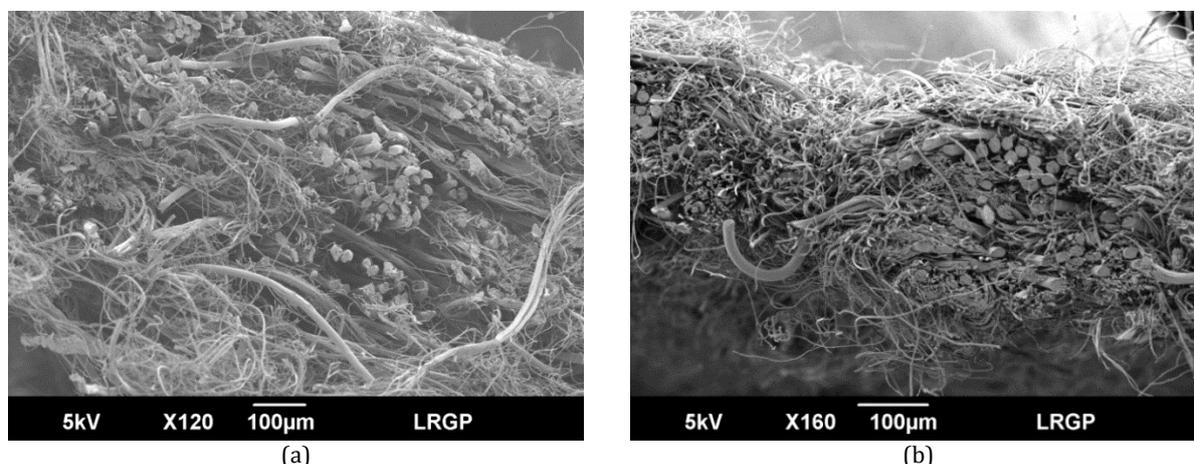


Figure 3-17 - Vue en coupe d'une structure spunbond îles-en-mer hydrofracturé (I/S PP/PLA 751 200 bars)

A l'aide d'un MEB, il est possible d'observer un échantillon fibre par fibre, en réalisant cela, nous pouvons obtenir des informations sur les mécanismes de fracturation d'un filament îles-en-mer. La Figure 3-18 représente un filament îles-en-mer fracturé, les îles sont enroulées les unes sur les autres. Ce phénomène d'enroulement est aussi présent avec les fibres bicomposantes segmentées après éclatement. Dans la structure fibreuse finale, les filaments « îles » ne sont pas répartis de manière uniforme, mais plutôt en amas de filaments « îles » et de filaments non fracturés.

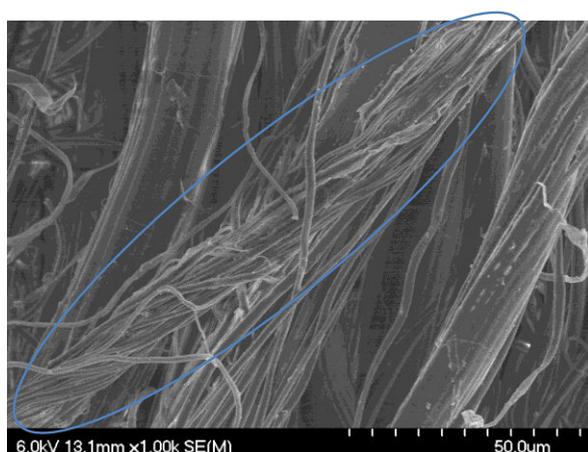


Figure 3-18 - Section d'une structure spunbond îles-en-mer fracturée par hydroliage (I/S PE/PA6)

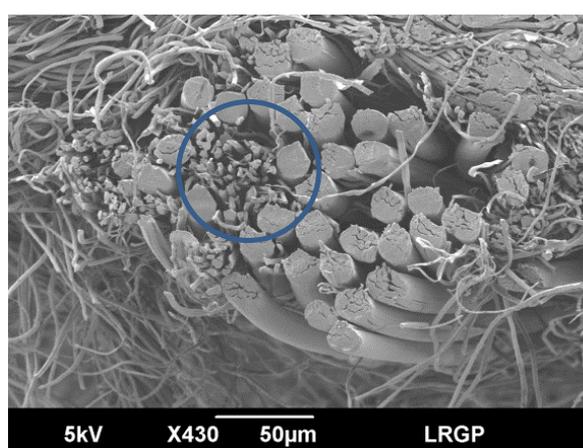


Figure 3-19 - Section d'échantillon fibre îles-en-mer où les îles constituent un amas (I/S PP/PLA)

La Figure 3-19 illustre des faisceaux de fibres îles-en-mer non fracturées entourés de filaments îles-en-mer fracturés. Sur cette figure, on repère au milieu du faisceau de filaments non fracturés, l'état d'un filament îles-en-mer après avoir été hydrofracturé.

De plus, on remarque qu'il n'y a pas de filaments îles-en-mer hydrofracturés partiellement, en deux filaments, par exemple. Cela suggère que les filaments îles-en-mer s'hydrofracturent avec un effet de seuil : soit l'hydrofracturation est presque complète ou soit l'hydrofracturation n'a pas lieu.

L'observation des images en vue de dessus (Figure 3-16) ou en section (Figure 3-17) renforce cette hypothèse. En effet, les filaments îles-en-mer qui s'hydrofracturent partiellement ne sont pas visibles, seuls les filaments non hydrofracturés et les fibrilles issues de l'hydrofracturation sont visibles.

Une recherche de filaments partiellement hydrofracturés à l'aide d'un MEB permet de repérer ponctuellement des états d'hydrofracturation intermédiaires comme à la Figure 3-20. La Figure 3-20 (a) illustre des îles qui s'extirpent ou se libèrent du filament îles-en-mer, à l'intérieur du cercle rouge. La Figure 3-20 (b) montre l'élément mer formant une gaine après que les îles se détachent des filaments îles-en-mer. Ces deux cas restent néanmoins rares.

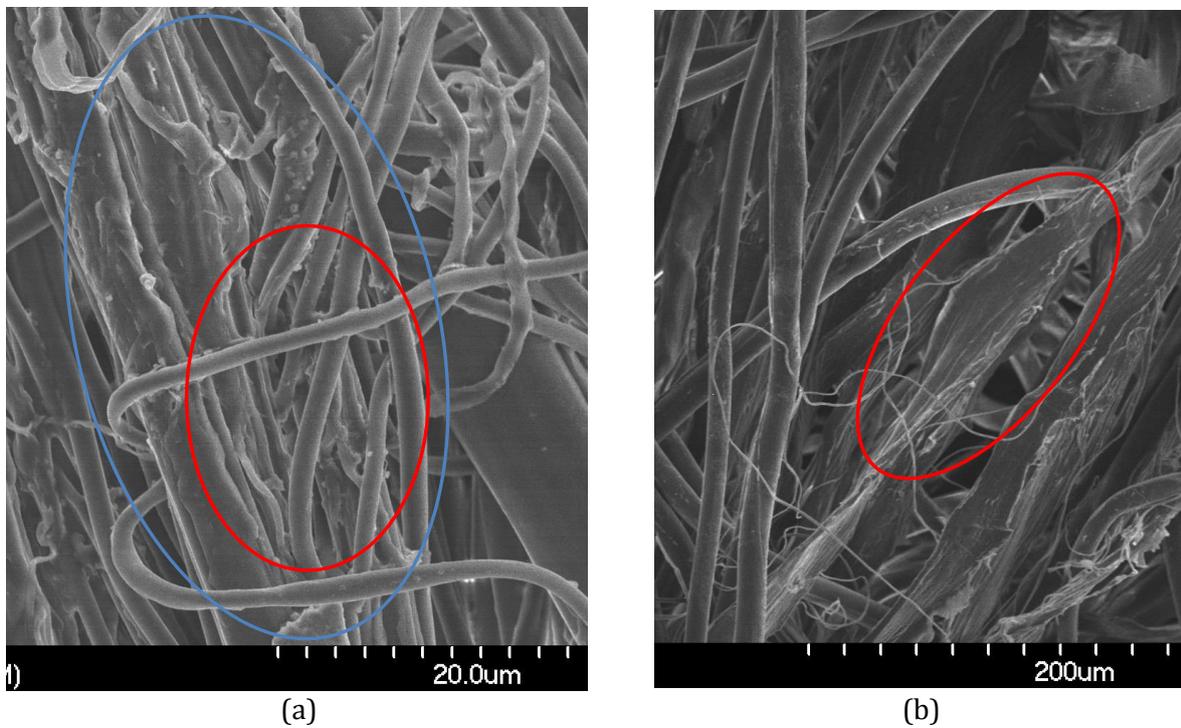


Figure 3-20 – Section d'échantillon fibre îles-en-mer (I/S PE/PA6)

Ndaro et al., 2007, présentent des images MEB de filaments îles-en-mer en section composés de 37 îles. Sur ces images, les filaments îles-en-mer fracturés se composent d'îles, de mer et d'associations de 1 à 4 îles avec de la mer qui représentent des éléments beaucoup plus petits que le filament îles-en-mer initial. Ainsi, ces images semblent confirmer une hydrofracturation par effet de seuil. Cela signifie que pour optimiser la fracturation, le point important est l'amorce de l'hydrofracturation. Car une fois l'hydrofracturation amorcée, les filaments îles-en-mer tendent à se fracturer de manière importante.

L'hypothèse de l'hydrofracturation avec un effet de seuil est intéressante, mais elle doit être nuancée par le fait que nous avons testé peu de couples de polymères. D'autres phénomènes tels que l'adhésion entre le polymère île et mer sont impliqués et ne sont pas étudiés ici. Ainsi, ces

premiers résultats constituent une ouverture pour des études approfondies sur les mécanismes exacts d'hydrofracturation d'un filament îles-en-mer.

En résumé, nous avons vu que l'observation en vue de dessus à l'aide d'image MEB permet de visualiser la fracturation. De plus, les coupes en section montrent que la fracturation est plus importante en surface qu'au centre. Cet effet peut être lié aux jets qui ne s'appliquent pas à toute la surface du média. Enfin, l'hydrofracturation des filaments îles-en-mer semble s'effectuer par seuil : soit le filament s'hydrofracture complètement soit il ne s'hydrofracture pas.

### 3.2.3.1.2 Validation du taux de fracturation

Avant d'utiliser l'estimation du taux de fracturation à l'aide de la mesure de la surface spécifique mesurée, nous avons validé la méthode en mesurant la surface spécifique d'un média composé de diamètre connu par deux dispositifs BET.

Pour cela, nous avons sélectionné un média spunbond avec un diamètre moyen de 14,88  $\mu\text{m}$ , mesuré à l'aide d'un microscope optique. La première mesure de la surface spécifique a été réalisée au LRGP à l'aide de la méthode décrite dans la partie 3.1.3.4.2. La deuxième mesure a été réalisée par la société Quantachrome Instruments (QI). Pour comparer les résultats, nous avons recalculé le diamètre des filaments à partir de la surface spécifiquement mesurée au LRGP et par QI selon l'équation (1-4) à savoir :

$$a_f = \frac{S_{fibres}}{V_{fibres}} = \frac{4}{\rho_f d_f} \quad (1-4)$$

Avec :

$a_f$ : Surface spécifique ( $\text{m}^2/\text{g}$ )

$\rho_f$ : Masse volumique de la fibre ( $\text{g}/\text{m}^3$ )

$S_{fibres}$ : Surface des fibres ( $\text{m}^2$ )

$V_{fibres}$ : Volume des fibres ( $\text{m}^3$ )

$d_f$ : diamètre des fibres (m)

Les résultats sont résumés dans le Tableau 3-6.

La comparaison entre le diamètre mesuré (14,88  $\mu\text{m}$ ), le diamètre obtenu au LRGP (14,48  $\mu\text{m}$  +/- 1,2  $\mu\text{m}$ ) et le diamètre obtenu par QI (13,6 +/- 0,69  $\mu\text{m}$ ) montrent des valeurs très proches même si le diamètre obtenu par QI est légèrement inférieur au diamètre moyen de l'échantillon.

Ensuite, pour vérifier la cohérence des mesures entre le LRGP et QI, nous avons mesuré la surface spécifique d'un média spunbond îles-en-mer hydrofracturé. Les résultats montrent des valeurs proches, mais pas identiques. La faible différence peut s'expliquer par les dispositifs, la méthode de préparation et l'analyse des résultats qui ne sont pas identiques entre le LRGP et QI (Tableau 3-6).

En définitive, ces deux comparaisons suggèrent donc que les mesures des surfaces spécifiques au LRGP sont cohérentes.

Tableau 3-6 – Comparaison des surfaces spécifiques et diamètres de filaments mesurés par microscope optique, dispositif BET au LRGP et dispositif BET de Quantachrome Instruments (QI)

		Média non fracturé	Média fracturé
Mesure microscope optique	Diamètre des filaments (µm)	14,88 µm	/
Mesure LRGP	Surface spécifique (m <sup>2</sup> /g)	0,2763 +/- 0,0115	1,66
	Diamètre moyen à partir de la surface spécifique (µm)	14,48 +/- 1,20	/
Mesure Quantachrome Instruments (QI)	Surface spécifique (m <sup>2</sup> /g)	0,29362 +/- 0,0156	1,44
	Diamètre moyen à partir de la surface spécifique (µm)	13,6 +/- 0,68	/

### 3.2.3.2 Influence du couple de polymères, du ratio île/mer et de la pression d'hydroliage sur le taux de fracturation

L'histogramme de la Figure 3-21 montre l'influence de la pression des jets d'eau, du ratio îles/mer et du couple de polymère sur le taux de fracturation BET. En effet, cette figure représente le taux de fracturation par méthode BET pour les trois couples de polymères îles/mer (PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA), pour 3 ratios îles/mer (25/75-50/50-75/25) pour des pressions de jets d'eau croissantes.

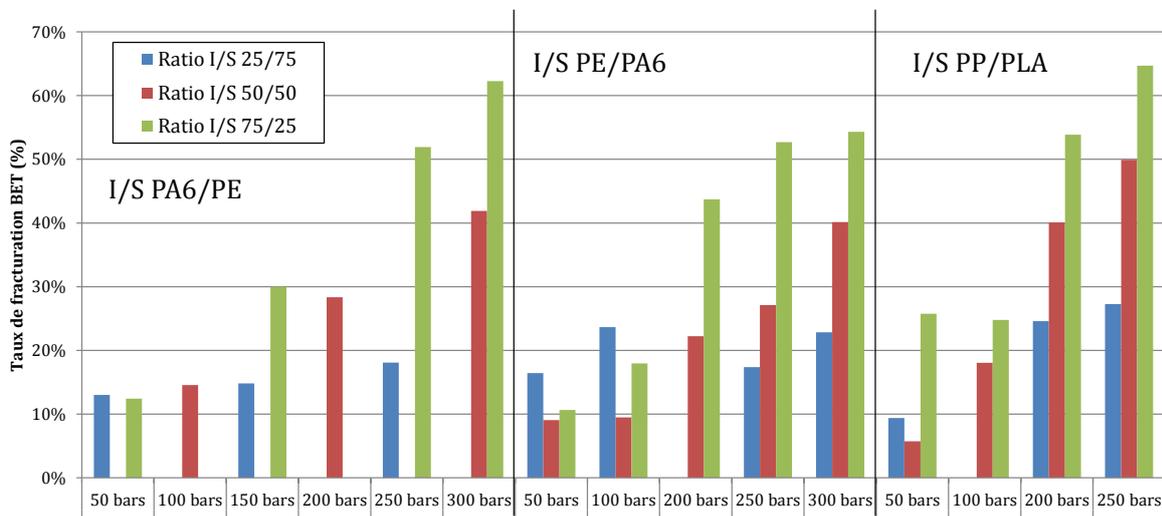


Figure 3-21 – Taux de fracturation estimé en fonction du ratio île/mer (ratio I/S 25/75 et 75/25) pour trois couples de polymères (I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA) à des pressions de jets d'eau comprises entre 50 et 300 bars.

Tout d'abord, le taux de fracturation augmente lorsque la pression des jets augmente. Par exemple, dans les cas du couple îles/mer PP/PLA et un ratio île/mer de 75/25, le taux de fracturation augmente de 26% pour une pression de jets de 50 bars à 65% pour une pression de jets de 250 bars.

La Figure 3-22 représente des vues de dessus de médias spunbond I/S PP/PLA 75/25 hydrofracturés à des jets de 50, 100, 200 et 250 bars et montre l'évolution de la surface du média lorsque la pression augmente. Dans ce cas, les filaments îles-en-mer sont très faiblement fracturés pour des jets à 50 bars, mais à 250 bars, la majorité des filaments îles-en-mer sont hydrofracturés.

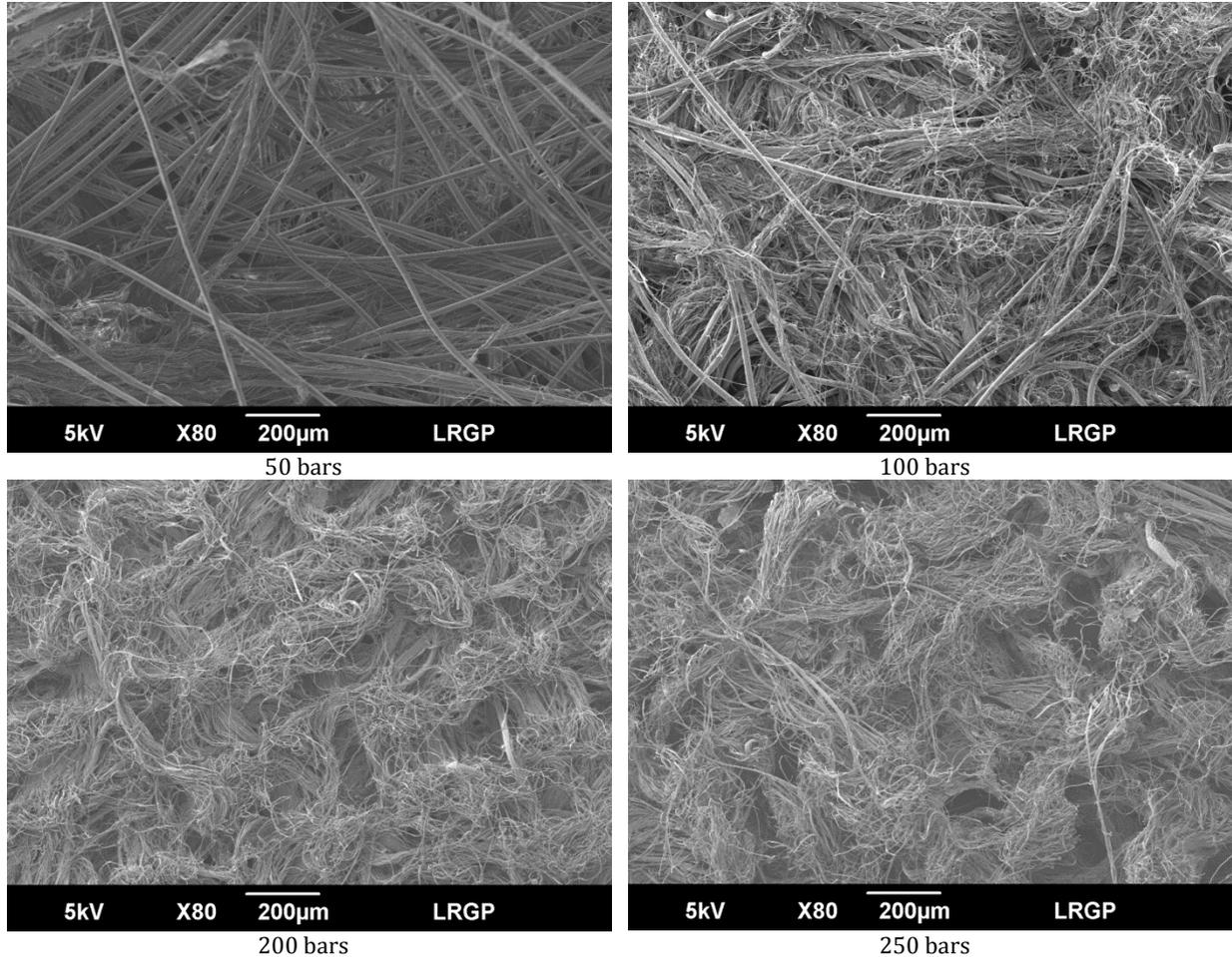


Figure 3-22 – Etat de la structure fibreuse pour différentes pressions d’hydrofracturation de 50 à 250 bars sur un échantillon spunbond I/S PP/PLA 75/25

L’augmentation du taux de fracturation lorsque la pression des jets augmente est largement observée dans la littérature (Ndaro et al. 2007; Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Pourdeyhimi & Fedorova 2013).

Néanmoins, cette augmentation doit être nuancée selon les ratios îles/mer. En effet, plus la quantité de mer est importante et plus l’augmentation du taux de fracturation est faible. Dans le cas du couple îles/mer PE/PA6 pour des pressions entre 50 et 300 bars, le taux de fracturation augmente de 16% à 23% pour le ratio îles/mer de 25/75, de 9% à 40% pour le ratio îles/mer de 50/50 et 11% à 54% pour le ratio îles/mer de 75/25. Comme mentionné au § 3.2.1.2, plus la quantité de mer est importante et plus la force nécessaire pour fracturer la mer est importante. Autrement dit, pour une même pression de jets d’eau, l’hydrofracturation est beaucoup plus importante lorsque la quantité de mer est faible.

La Figure 3-23 et Figure 3-24 illustrent respectivement un média avec un ratio îles/mer de 25/75 et un média avec un ratio îles/mer de 75/25. La comparaison des deux images souligne que la fracturation est bien plus importante dans le cas du ratio îles/mer de 75/25.

Bien que cette tendance puisse être attendue, elle s'oppose à la diminution du diamètre des îles en diminuant la quantité du polymère îles par rapport à la mer (§ 3.2.1.4). Ainsi, le choix du ratio îles/mer doit prendre en compte la possibilité de fracturation de la mer et le diamètre des îles souhaité. Nous notons que les exemples de fracturation dans la littérature utilisent une faible quantité de mer avec des ratios îles/mer supérieurs à 70/30 (Anantharamaiah et al. 2008; Durany et al. 2009; Suvari et al. 2013; B.-Y. Yeom & Pourdeyhimi 2011; Pourdeyhimi & Fedorova 2013).

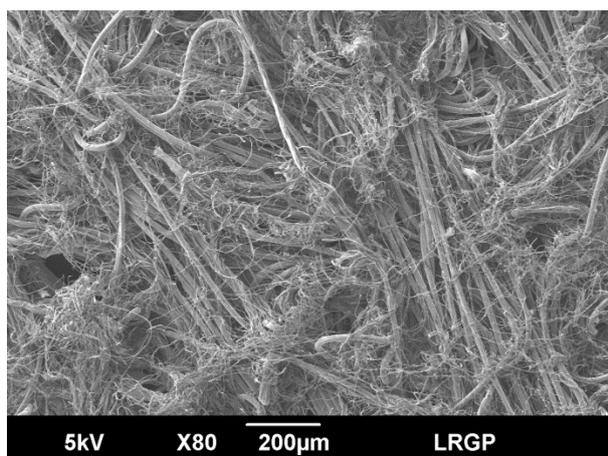


Figure 3-23 – I/S 25/75 PP/PLA 200 bars

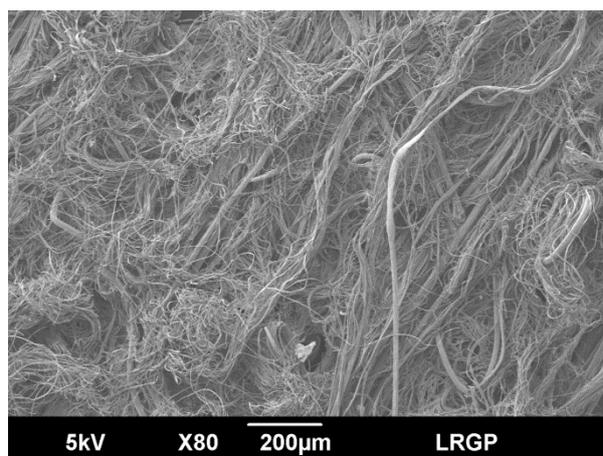


Figure 3-24 – I/S 75/25 PP/PLA 200 bars

La comparaison des taux de fracturation en fonction du couple îles/mer ou du polymère mer (Figure 3-21) montre que les taux de fracturation entre le couple île/mer PA6/PE et PE/PA6 sont similaires tandis que les taux de fracturation affichés par le couple île/mer PP/PLA sont plus importants que les deux autres couples. Par exemple, pour un ratio îles/mer de 75/25 et une pression de jets d'eau de 250 bars, le taux de fracturation est de 52% pour le couple îles/mer PA6/PE, 53% pour le couple îles/mer PE/PA6 et 65% pour le couple îles/mer PP/PLA. Précédemment, nous avons fait l'hypothèse que l'hydrofracturation peut être assimilée à une rupture due à un choc. Ainsi, les propriétés mécaniques à considérer dans ce cas étaient le module de Young ou la résistance au choc. Ces résultats semblent confirmer cette hypothèse, car le PLA possède une résistance au choc beaucoup plus faible (0,00016 kJ/m) que le PE (1,064 kJ/m) et le PA6 (0,25 kJ/m). Néanmoins, le PA6 et le PE affichent des taux de fracturation similaires malgré un écart entre leur module de Young et leur résistance au choc. Une des explications peut être la faible résistance à la rupture en traction du PE (10 N) comparé au PA6 (40 N). Ainsi, malgré une sensibilité au choc plus importante, le matériau nécessite une force plus importante pour se fracturer. Ces résultats suggèrent donc que la résistance au choc et la résistance à la rupture jouent un rôle dans l'hydrofracturation. Ainsi, le polymère idéal semble être un polymère avec une faible résistance à la rupture en traction et une faible résistance au choc. Ces explications doivent être nuancées par le fait que nous avons utilisé des données théoriques ainsi, la mesure des performances mécaniques des polymères utilisés en traction et en résistance au choc constitue un point important à réaliser par la suite.

En définitive, l'étude de l'influence du couple îles/mer, du ratio îles/mer, et la pression des jets nous a permis de montrer qu'un polymère mer sensible au choc et/ou qui possède une faible résistance à la rupture permet de favoriser l'hydrofracturation.

Puis, l'augmentation des jets augmente l'hydrofracturation, mais l'augmentation dépend fortement du ratio îles/mer ainsi une faible quantité de mer permet de favoriser l'hydrofracturation et une quantité importante de mer limite l'hydrofracturation.

Maintenant que nous avons étudié l'influence des paramètres des procédés et polymères sur le taux de fracturation, nous allons nous intéresser à la qualité du média final. En effet, l'utilisation de jets d'eau à haute pression a des conséquences sur les propriétés et l'intégrité du média.

### 3.2.3.3 Influence de la pression d'hydroliage sur les caractéristiques de structures (Masse surfacique, épaisseur, compacité et perméabilité)

En théorie, l'opération d'hydroliage induit des phénomènes de rétrécissement en longueur et en largeur du voile. Cela peut alors augmenter la masse surfacique. Un autre effet de l'opération d'hydroliage est de compacter le média fibreux et de déstructurer le média lorsque la pression des jets d'eau est trop élevée. Dans le cas de l'hydrofracturation de filaments îles-en-mer, les pressions des jets utilisés peuvent atteindre 300 bars ainsi, nous allons étudier l'évolution de la masse surfacique, de l'épaisseur, de la compacité et de la perméabilité en fonction de la pression d'hydroliage. Afin de limiter notre étude aux échantillons avec un taux de fracturation important, nous nous sommes limités aux structures avec un ratio île/mer de 75/25.

#### 3.2.3.3.1 Évolution de la masse surfacique et de l'épaisseur en fonction de la pression des jets d'eau

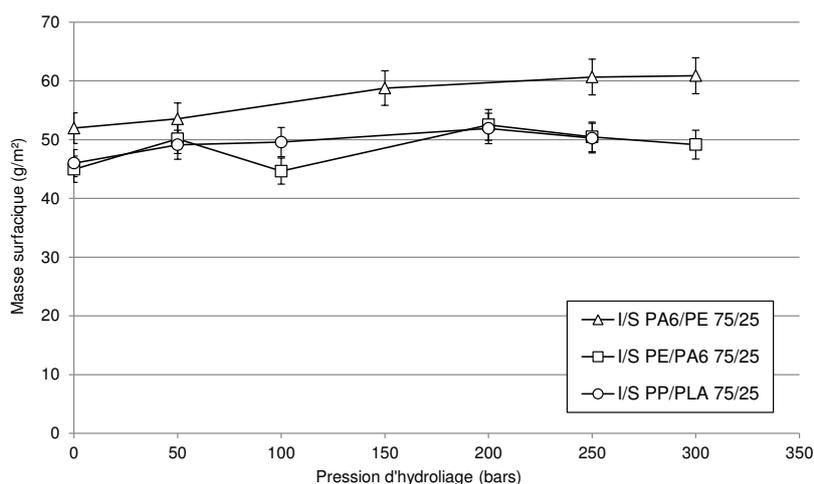


Figure 3-25 – Évolution de la masse surfacique du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau

La Figure 3-25 décrit l'évolution de la masse surfacique en fonction de la pression des jets d'eau pour trois couples de polymères (I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA) à un ratio île/mer de 75/25. Chaque point correspond à un échantillon hydrofracturé.

Les résultats montrent que la masse surfacique augmente légèrement. Par exemple, dans le cas du voile I/S PA6/PE 75/25, la masse surfacique augmente de 52 à 58 g/m<sup>2</sup>. Cela est dû au phénomène de retrait en largeur de la structure. En effet, la largeur de la structure peut rétrécir en réponse à l'action combinée des jets d'eau qui maintiennent la structure sur le tapis et le tapis qui avance. Cette double action crée une contrainte de cisaillement, qui fait rétrécir le voile sur la largeur. Ainsi, la masse surfacique augmente localement (Brunnschweiler et al. 2006). Ensuite, le fait que la masse surfacique ne chute pas signifie que l'élément mer reste dans la structure même après fracturation. L'étude d'Anantharamaiah *et al.* 2008, confirme cette hypothèse.

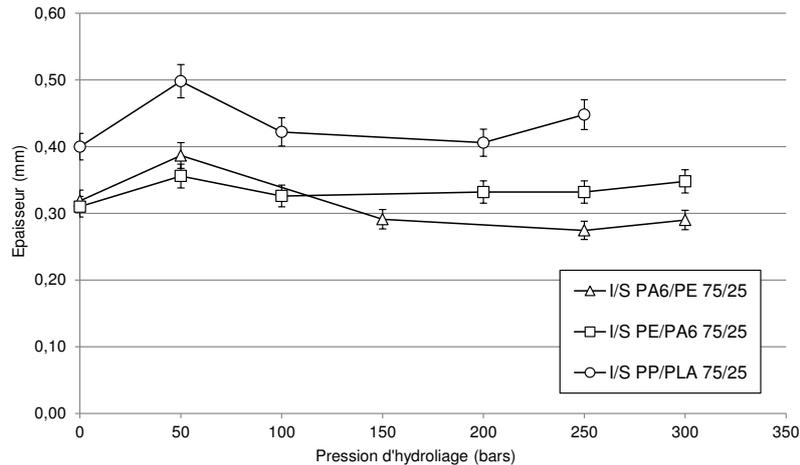


Figure 3-26 – Évolution de l'épaisseur du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau

La Figure 3-26 illustre l'évolution de l'épaisseur en fonction de la pression des jets d'eau pour trois couples de polymères (I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA) à un ratio île/mer de 75/25. Chaque point correspond à un échantillon hydrofracturé. Le graphique montre que l'épaisseur varie peu entre 0 et 300 bars pour les trois couples même s'il y a un pic d'augmentation pour les trois couples à 50 bars. Cela suggère qu'à 50 bars de pression, l'énergie fournie par les jets d'eau est suffisante pour entremêler les fibres, mais trop faible pour générer de la fracturation ou compacter le média. Ainsi, pour de faibles pressions d'hydroliage, au lieu de générer de la fracturation ou de compacter la structure, les fibres se réorganisent et s'enchevêtrent, ce qui augmente l'épaisseur. Cela peut aussi être dû au phénomène de retrait comme c'est le cas avec la masse surfacique.

### 3.2.3.3.2 Évolution de la compacité et de la perméabilité en fonction de la pression des jets d'eau

La Figure 3-27 compare l'évolution de la compacité en fonction de la pression des jets d'eau pour trois couples de polymères (I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA) à un ratio île/mer de 75/25. Chaque point correspond à un échantillon hydrofracturé. La figure montre que la compacité augmente de 15% à 20%, dans le cas du couple I/S PA6/PE 75/25 et reste quasi constant pour les couples I/S PE/PA6 75/25 (15%) et PP/PLA 75/25 (10%) lorsque la pression d'hydroliage augmente. Le couple îles/mer PA6/PE suit la tendance attendue cependant les couples îles/mer PE/PA6 et PP/PLA s'opposent à l'augmentation de la compacité.

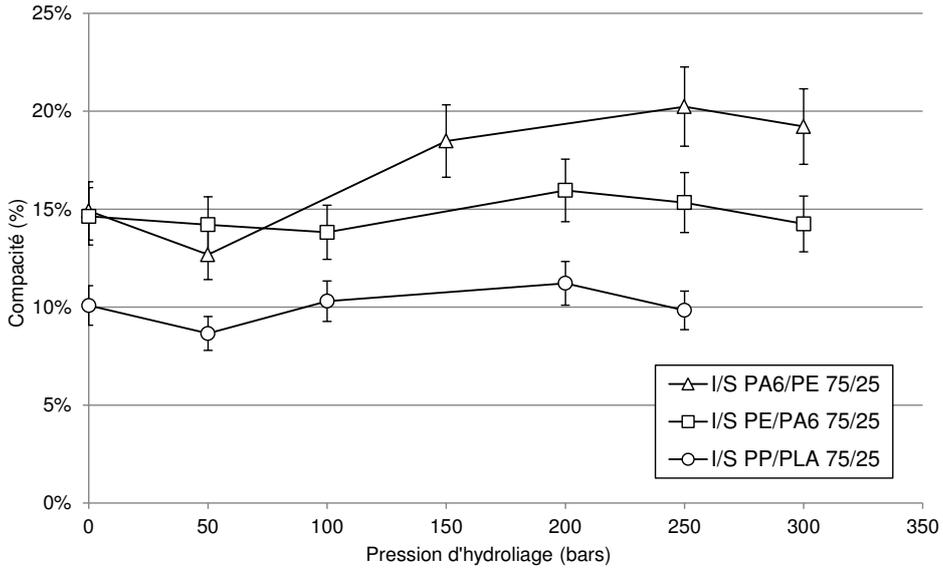


Figure 3-27 – Évolution de la compacité du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau

On retrouve une tendance comparable avec l'étude de la perméabilité en fonction de la pression des jets d'eau. La Figure 3-28 compare l'évolution de la perméabilité en fonction de la pression des jets d'eau pour trois couples de polymères (I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA) à un ratio île/mer de 75/25. Pour chaque couple de polymères îles/mer, la perméabilité diminue dans un premier temps puis augmente lorsque la pression des jets augmente. Cette tendance est surtout marquée pour les couples îles/mer PE/PA6 et PP/PLA. Dans le cas du couple îles/mer PA6/PE, l'augmentation de la perméabilité reste relativement faible.

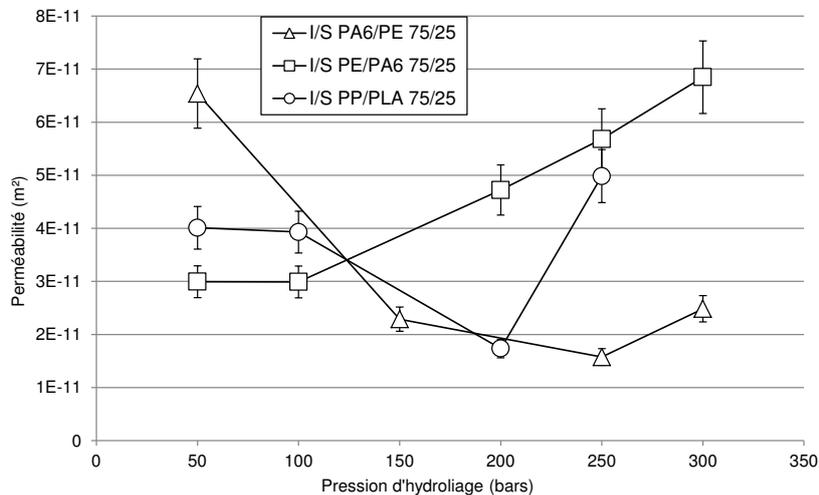


Figure 3-28 – Évolution de la perméabilité du spunbond en fonction de la pression des jets d'eau

Une des explications est la déstructuration du voile pour des pressions importantes. Au lieu de compacter la structure, les jets d'eau traversent le voile en formant des trous ainsi, l'augmentation de la pression des jets d'eau ne compacte pas la structure, mais traverse la structure et crée des passages préférentiels. Par conséquent, l'augmentation de la perméabilité indique la pression des jets d'eau à partir de laquelle ils détériorent significativement le voile.

En faisant cette hypothèse, les pressions des jets d'eau maximales avant détérioration du voile pour les couples I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA sont respectivement de 250, 100 et 200 bars. La Figure 3-29 et la Figure 3-30 illustrent un média hydrofracturé île/mer PE/PA6 à respectivement 100 et 250 bars. Le média hydrofracturé à 250 bars présente des trous locaux comparé au média hydrofracturé à 100 bars, ce qui tend à confirmer l'hypothèse d'une pression trop importante qui déstructure le voile.

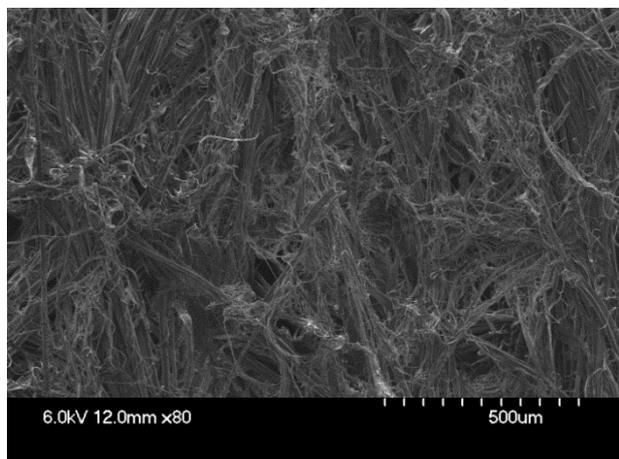


Figure 3-29 – I/S 75/25 PE/PA6 100 bars

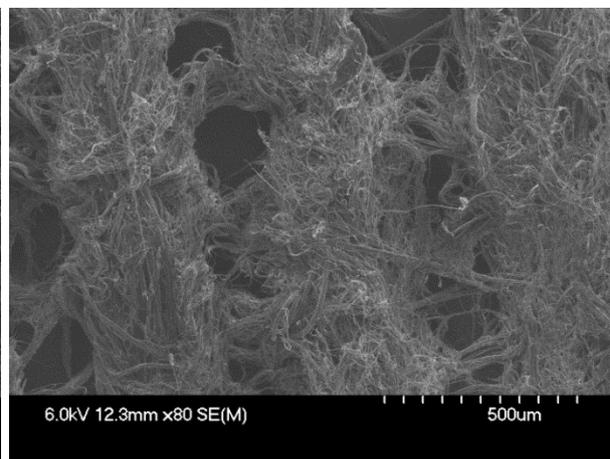


Figure 3-30 – I/S 75/25 PE/PA6 250 bars

La différence de pression des jets d'eau maximale avant détérioration du voile entre les couples îles/mer PE/PA6 (100 bars) et PP/PLA (200 bars) par rapport au couple PA6/PE peut s'expliquer par la capacité du PE à absorber les chocs. Lors du contact des jets d'eau à hautes pressions et des filaments îles-en-mer PA6/PE, les filaments absorbent l'énergie au lieu de s'écarter, ce qui limite la déstructuration et augmente la compacité. L'observation des images MEB tend à valider cette hypothèse. Pour une pression de 250 bars, la surface du média spunbond île/mer PA6/PE est moins déstructurée (Figure 3-31) que le média spunbond îles/mer PE/PA6 (Figure 3-30).

On peut cependant noter que pour une pression de 300 bars, la pression est trop importante et des trous apparaissent dans le cas du média spunbond îles-en-mer île/mer PA6/PE comme l'illustre la Figure 3-32 et l'augmentation de la perméabilité entre 250 et 300 bars à la Figure 3-28.

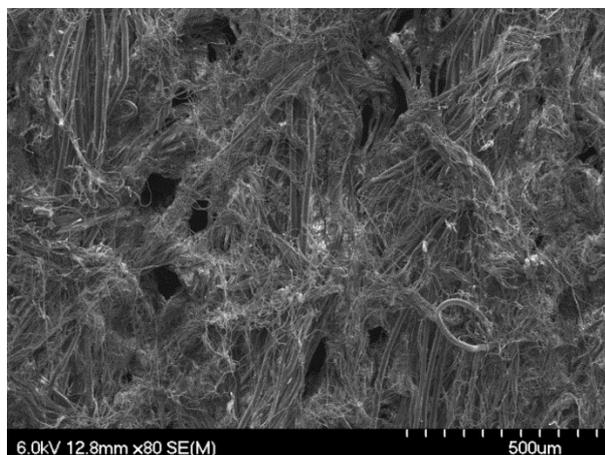


Figure 3-31 – I/S 75/25 PA6/PE 250 bars

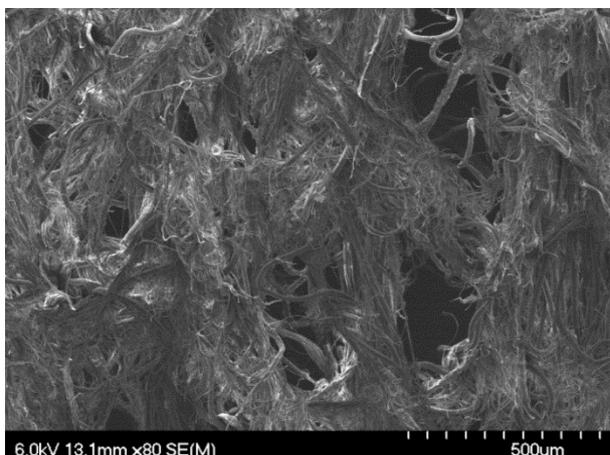


Figure 3-32 – I/S 75/25 PA6/PE 300 bars

### 3.2.4 CONCLUSION

En définitive, dans cette partie, nous avons étudié l'influence de 3 paramètres sur l'hydrofracturation des filaments îles-en-mer puis nous avons étudié l'impact des jets d'eau à hautes pressions sur les caractéristiques de structures du média et la qualité du média.

Tout d'abord, les résultats suggèrent que pour favoriser l'hydrofracturation, le polymère mer doit être très rigide (cassant) et peu résistant au choc comme pour le PLA, mais qu'une faible résistance à la rupture en traction comme pour le PE permet d'atteindre des taux de fracturation comparables à un matériau de rigidité intermédiaire tel que le PA6. De plus, l'analyse des images MEB de médias hydrofracturés évoque l'hypothèse d'une hydrofracturation par seuil c'est-à-dire que les filaments îles-en-mer s'hydrofracturent presque totalement ou pas du tout. Cette hypothèse nécessite une étude plus approfondie pour être confirmée.

Ensuite, nous avons vu que l'hydrofracturation augmente lorsque la pression augmente mais, à des degrés divers selon le ratio île/mer. Pour une même pression, l'hydrofracturation augmente lorsque la fraction de la mer diminue. Le taux de fracturation d'un média à fibres îles-en-mer de ratio îles/mer de 25/75 ne dépasse pas 30%. Cependant, un ratio île/mer de 50/50 permet de dépasser les 50% de taux de fracturation même si la fracturation est plus importante pour un ratio île/mer de 75/25.

Enfin, l'étude de l'évolution des caractéristiques de structures et de la qualité du voile a montré que l'utilisation de jets d'eau à hautes pressions trop importantes détériore le voile, en écartant les fibres et en formant des trous. Cependant, la pression des jets d'eau maximale avant détérioration du voile dépend du couple de polymère. En effet, ce phénomène reste limité dans le cas où la mer est un polymère capable d'absorber les chocs tels que le PE avec une pression maximale de jets d'eau de 250 bars pour un taux de fracturation de 53%. Au contraire, pour les couples I/S PE/PA6 et PP/PLA, les pressions des jets d'eau maximales sont respectivement de 100 et 200 bars pour un taux de fracturation respectivement de 18% et 54%.

En considérant un taux de fracturation acceptable de 60%, les pressions nécessaires sont supérieures aux pressions des jets d'eau maximales avant détérioration du voile. Ainsi, dans nos conditions, nous ne pouvons pas définir une pression minimum permettant d'obtenir une hydrofracturation acceptable sans déstructurer le média.

Pour pouvoir atteindre ce double objectif, nous pouvons augmenter la masse surfacique afin d'augmenter l'absorption des chocs, utiliser des injecteurs à des pressions plus basses en augmentant le nombre de passages sous les injecteurs ou encore dégrader l'élément mer pour améliorer l'hydrofracturation toute chose étant égale par ailleurs.

### 3.3 STRATEGIE DE DIMINUTION DE L'ENERGIE D'HYDROFRACTURATION PAR UTILISATION ET DEGRADATION DU PLA EN MER

#### 3.3.1 CONTEXTE ET OBJECTIFS DE L'ETUDE

Dans cette partie, nous allons diminuer les performances mécaniques du PLA par dégradation du PLA afin de générer une plus grande fracturation pour une pression de jet d'eau plus faible. Pour cela, nous expliquerons le principe de la démarche et les structures développées, puis nous observerons la dégradation et enfin nous comparerons les taux de fracturation avant et après dégradation.

#### 3.3.2 PRINCIPE DE DEGRADATION DU PLA

La dégradation du PLA consiste à hydrolyser les chaînes moléculaires du PLA afin de les rompre (Figure 3-33) et ainsi réduire les performances mécaniques du PLA. De ce fait, le PLA en tant qu'élément mer sera plus sensible à la fracturation (Dugan 2001; Farrington et al. 2006).

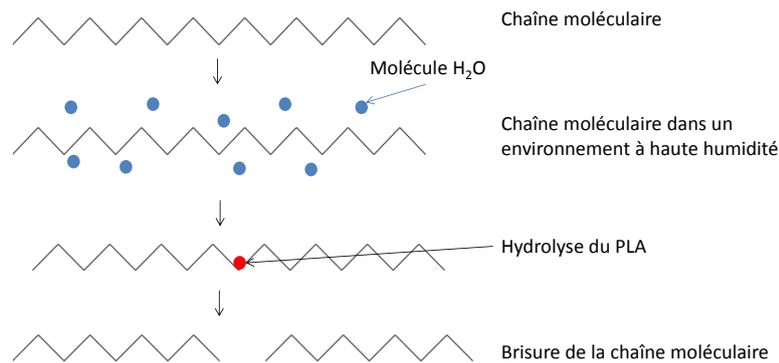


Figure 3-33 – Schéma de l'hydrolyse sur les chaînes de PLA

A priori, cela permettrait d'une part d'utiliser moins d'énergie pour générer une fracturation mais également de moins endommager la structure finale.

#### 3.3.3 POLYMERES UTILISES ET CONDITIONS DES ESSAIS

Dans le cadre de cette étude, nous avons utilisé des structures spunbond I/S PP/PLA avec un ratio îles/mer 50/50 et une masse visée de 100 g/m<sup>2</sup>. Comme les structures spunbond îles-en-mer de la partie 3.2.2.1.1, les structures spunbond îles-en-mer ont été créées au CETI à l'aide d'un procédé spunbond bicomposant Hills © et d'une filière îles-en-mer composée de 37 îles. Les caractéristiques du voile spunbond sont résumées dans le Tableau 3-7. Les caractéristiques des PP et du PLA utilisées sont détaillées dans le Tableau 3-2.

Tableau 3-7 – Caractéristiques des structures spunbond îles-en-mer avant hydroliage et dégradation

Référence	Polymère île	Polymère mer	Ratio % île/mer en masse	Nombre d'îles	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Épaisseur (mm)	Compacité (%)	Diamètre des filaments (µm)	Diamètre des îles (µm)
PP/PLA-50I	PP	PLA	50/50	37	98	0,81	11%	15,1	1,8

Ensuite, les structures spunbond ont été dégradées dans une enceinte climatique CLIMATS de l'ENSAIT où le taux d'humidité et la température sont contrôlés (Figure 3-34).



Figure 3-34 – Enceinte climatique CLIMATS (ENSAIT)

Plus précisément, les structures spunbond ont été dégradées à 60°C, température légèrement supérieure à la température de transition vitreuse du PLA et un taux d'humidité proche de 100% pendant une durée de 1 à 9 jours. Le Tableau 3-8 détaille les conditions de l'enceinte climatique et les structures dégradées.

Tableau 3-8 – Conditions de l'enceinte climatique et condition d'hydroliage pour chacune des structures dégradées

Référence	Conditions de l'enceinte climatique			Conditions d'hydroliage			
	Température (°C)	Taux d'humidité (%)	Temps de dégradation (jours)	Injecteur 11	Injecteur 12	Injecteur 21	Injecteur 22
PP/PLA-50I 0j	N.A.	N.A.	0	100 200	100 200	100 200	100 200
PP/PLA-50I 2j			1	100 200	100 200	100 200	100 200
PP/PLA-50I 4j			2	100 200	100 200	100 200	100 200
PP/PLA-50I 7j	60°C	≈ 100%	7	100 200	100 200	100 200	100 200
PP/PLA-50I 9j			9	100 200	100 200	100 200	100 200

Enfin, les structures spunbond ont été hydrofracturées par 4 injecteurs à 100 bars ou par 4 injecteurs à 200 bars. Nous avons choisi les pressions de 100 et 200 bars, car nous avons vu que pour les pressions supérieures à 200 bars, les médias tendent à se déstructurer et qu'à 50 bars la fracturation n'a pas lieu.

L'hydroliage a été réalisé au CETI sur un procédé d'hydroliage Perfojet© Andritz comme détaillé dans la partie 3.2.2.1.2. Les injecteurs d'hydroliage sont équipés de lames d'hydroliage avec une seule rangée de trous de 140 µm de diamètre, espacés de 0,6 mm. Les paramètres d'essai sont résumés dans le Tableau 3-8. Les caractéristiques des structures produites sont détaillées dans le Tableau 3-9.

Tableau 3-9 – Caractéristiques des structures spunbond files-en-mer dégradées et hydrofracturées

Référence	Pressions des jets d'eau (bars)	Durée de dégradation (jours)	Masse surfacique (g/m <sup>2</sup> )	Épaisseur (mm)	Compacité (%)	Taux de fracturation BET(%)	Surface spécifique (m <sup>2</sup> /g)
PP/PLA 50I 0j	100	0 j	99	0,81	12%	12%	0,55
	200		100	0,62	15%	26%	0,90
PP/PLA 50I 2j	100	2 j	98	0,84	11%	16%	0,66
	200		101	0,60	16%	27%	0,93
PP/PLA 50I 4j	100	4 j	91	0,84	10%		
	200		99	0,58	16%	51%	1,53
PP/PLA 50I 7j	100	7 j	96	0,77	12%	23%	0,82
	200		105	0,60	16%	58%	1,70
PP/PLA 50I 9j	100	9 j	95	0,81	11%	39%	1,22
	200		91	0,57	15%	76%	2,14

### 3.3.4 ANALYSE DES RESULTATS

#### 3.3.4.1 Validation de la dégradation par DSC

Afin d'étudier les effets de la dégradation sur les chaînes moléculaires, nous avons réalisé des DSC (Differential Scanning Calorimetry) sur des échantillons dégradés pendant une durée de 1 à 14 jours. Des échantillons de 10 mg ont été testés sur un cycle de DSC avec une augmentation de 10°C/min.

Trois propriétés ont été observées : la température de transition vitreuse  $T_g$ , le pic de cristallisation froide et la température de fusion. Ici, nous avons montré l'évolution de la température de transition vitreuse  $T_g$  en fonction du temps de dégradation sur la Figure 3-35. Le point d'inflexion de la courbe DSC correspond à la température de transition vitreuse de l'échantillon. En comparant les courbes DSC de 0 à 14 jours de dégradation, le point d'inflexion se situe à des températures de plus en plus faibles. Cela signifie que l'augmentation du temps de dégradation augmente la cassure des chaînes moléculaires du PLA.

Ainsi, avec des chaînes moléculaires plus petites, le désenchevêtrement des chaînes moléculaires nécessite moins d'énergie et démarre donc à une température plus faible. Autrement dit, la température de transition vitreuse diminue. On observe des tendances similaires pour les pics de cristallisation froide et la température de fusion. La baisse de la taille des chaînes moléculaires implique une baisse de performances mécaniques telles que la résistance à la rupture ou au choc (Crompton 2012).

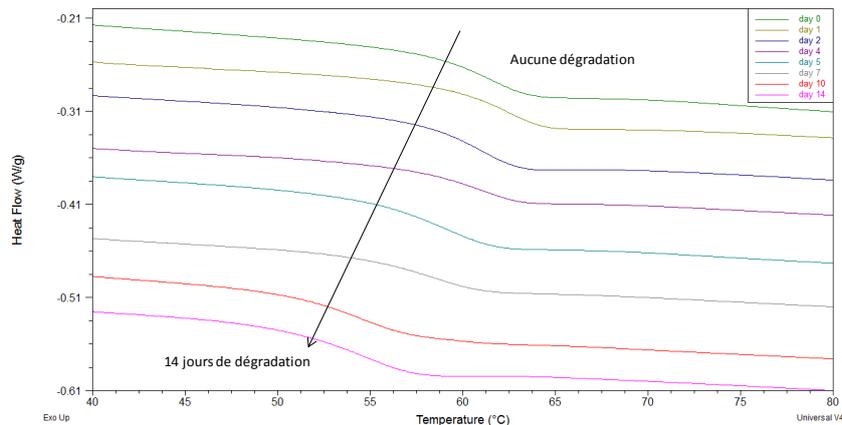


Figure 3-35 – Évolution de la température de transition vitreuse en fonction de la durée de la dégradation

Ainsi l'analyse des courbes DSC montre une modification moléculaire du PLA suggérant que la dégradation a une réelle influence sur les chaînes moléculaires du PLA et donc sur les performances mécaniques.

### 3.3.4.2 Qualité de l'hydrofracturation des fibres

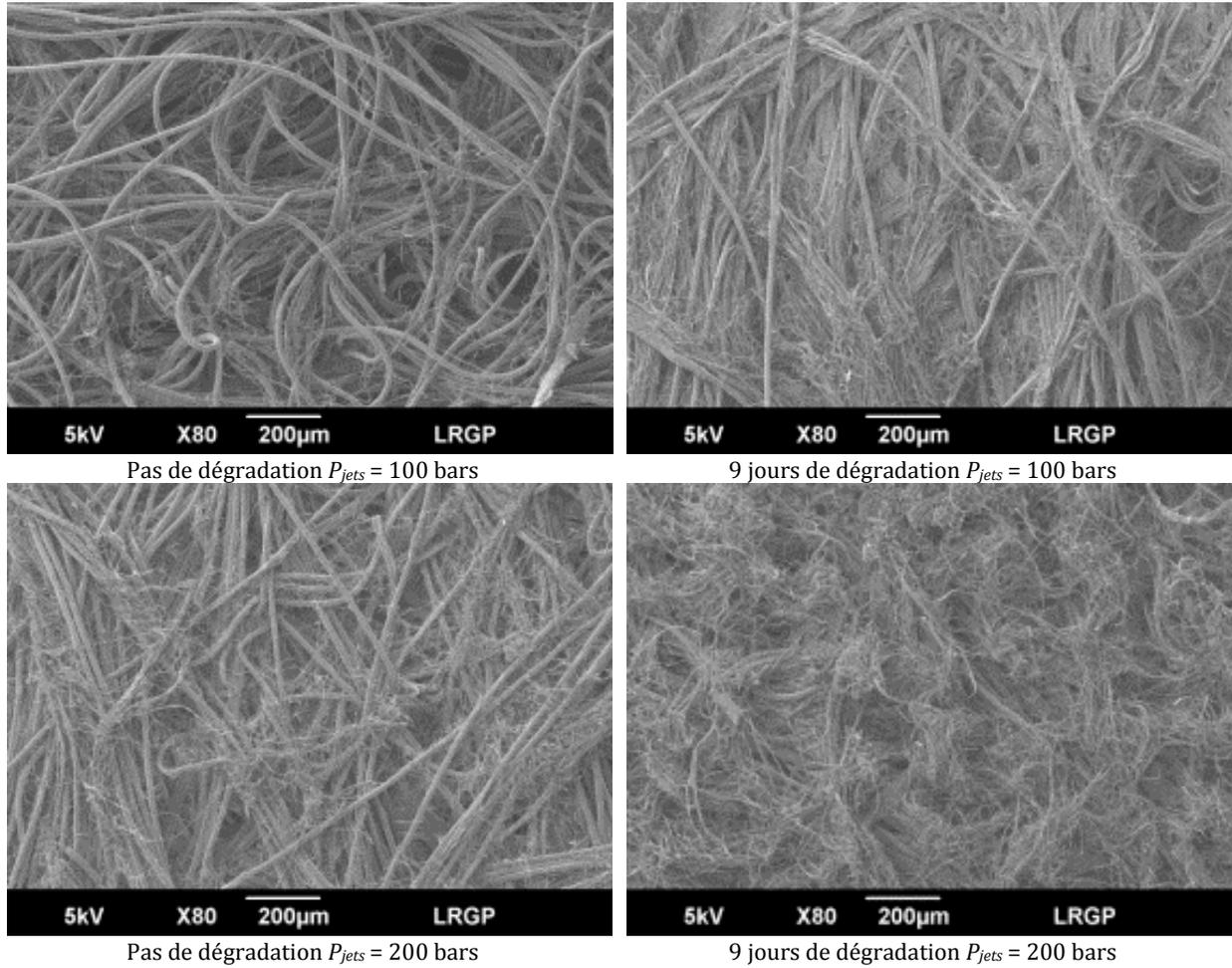


Figure 3-36 – Image MEB de vues de dessus de structures spunbond sans dégradation et avec dégradation

Dans le but d'observer l'influence de la dégradation, nous allons comparer la fracturation des structures non dégradées et des structures dégradées à une même pression d'hydroliage. Pour cela, nous observerons en vue de dessus les échantillons et nous mesurons le taux de fracturation des échantillons.

L'observation de l'effet de la dégradation sur la fracturation peut se faire en comparant les images MEB en vue de dessus entre un échantillon non dégradé et un échantillon dégradé. Ainsi, la Figure 3-36 compare les échantillons non dégradés et dégradés à 100 et 200 bars. On remarque que la fracturation est beaucoup plus importante pour les échantillons dégradés.

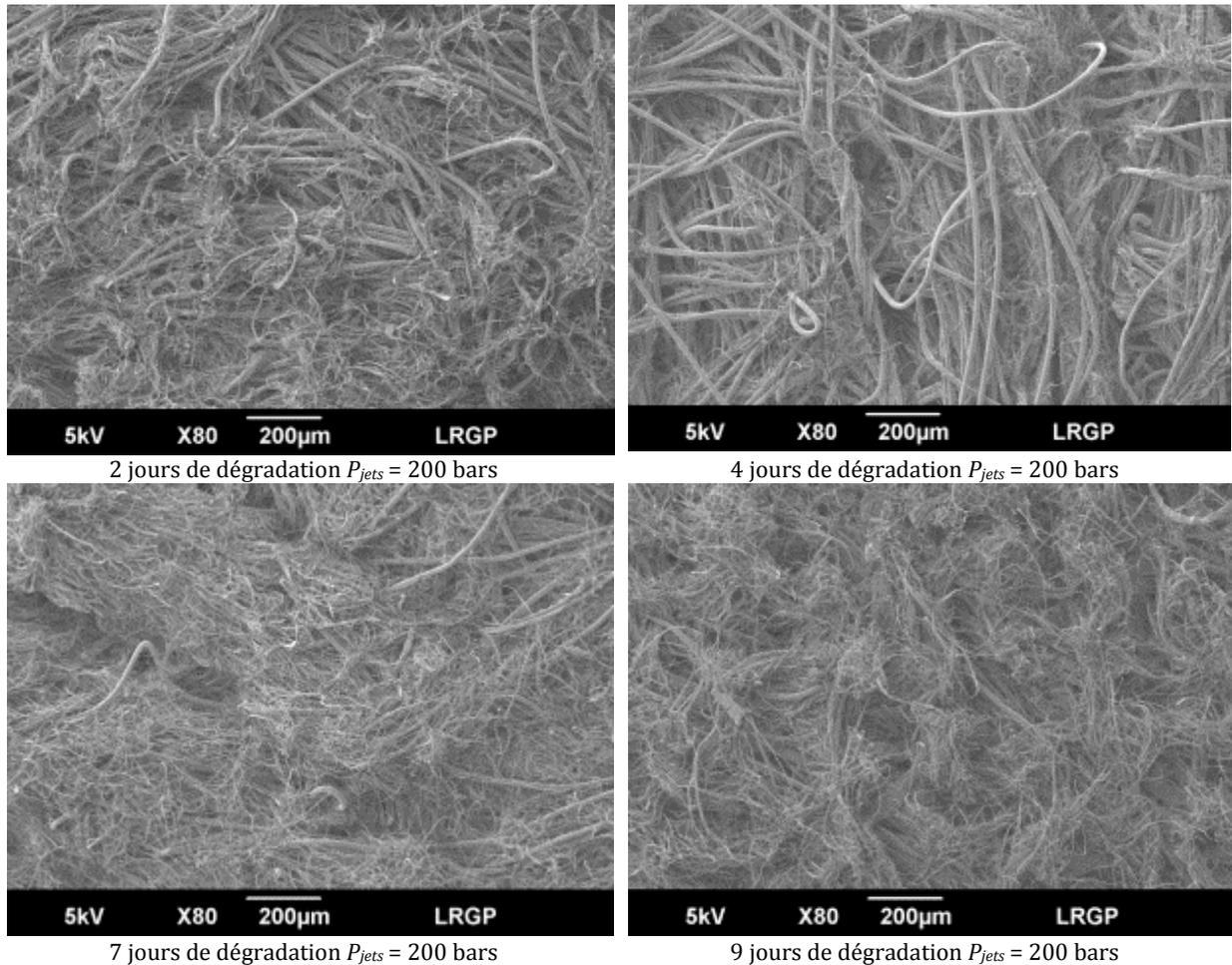


Figure 3-37 – Évolution de la fracturation en fonction de la durée de dégradation à une pression d'hydroliage de 200 bars

La Figure 3-37 compare les images MEB en vue de dessus en fonction de la durée de la dégradation pour une pression de 200 bars. Lorsque la durée augmente, l'hydrofracturation s'accroît. Cela montre que la dégradation permet de favoriser l'hydrofracturation. On peut noter qu'à 9 jours de dégradation, la fracturation est très importante, du moins, en surface.

De manière plus quantitative, la Figure 3-38 compare le taux de fracturation mesuré par le dispositif BET en fonction du temps de dégradation pour des pressions de 100 bars et de 200 bars. Dans les deux cas, l'augmentation de la durée de dégradation augmente le taux de fracturation. Ces résultats sont en accord avec les images MEB. On peut noter que l'on atteint 76% dans le cas d'une durée de dégradation de 9 jours et un hydroliage à 200 bars alors qu'à 200 bars sans dégradation le taux de fracturation n'est que de 26%. Cela montre que la dégradation permet d'atteindre un fort taux de fracturation à une pression d'hydroliage plus faible.

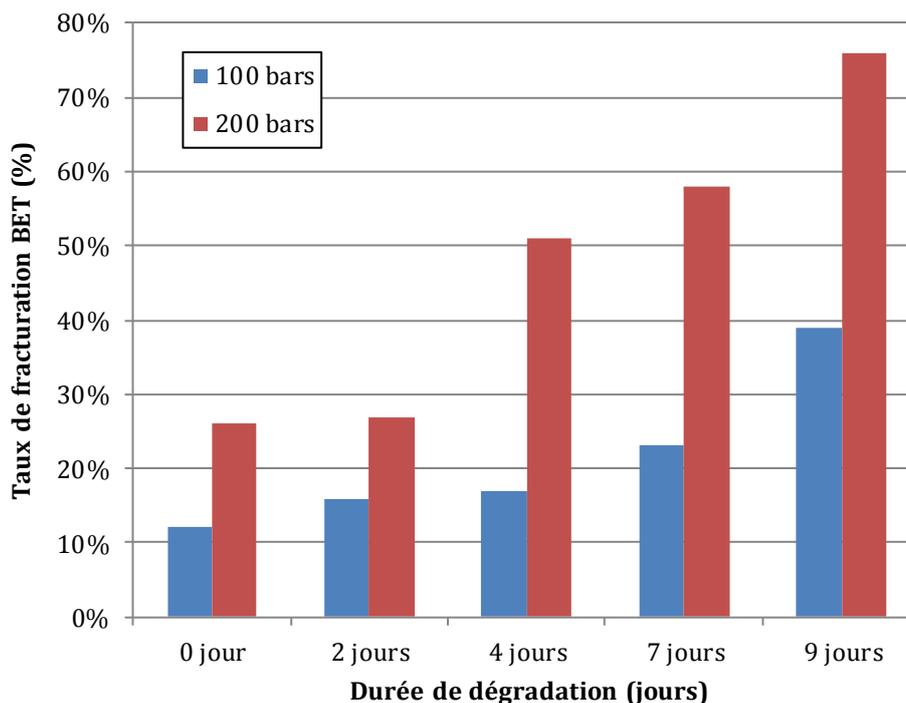


Figure 3-38 – Taux de fracturation en fonction du temps de dégradation

L'observation des images MEB comme celle de la Figure 3-37 montre que le voile n'est pas détérioré pour des pressions des jets d'eau à 200 bars. Néanmoins, cette non détérioration est à nuancer car elle est aussi liée à la masse surfacique de nos structures qui sont plus importantes que précédemment ( $100 \text{ g/m}^2$  au lieu de  $50 \text{ g/m}^2$ ). Ainsi, nous obtenons à la fois des médias avec un taux de fracturation estimé élevé tout en ne dégradant pas le voile.

### 3.3.5 CONCLUSION

En définitive, nous avons proposé une approche pour obtenir un média spunbond îles-en-mer hydrofracturé avec une énergie plus faible. Pour cela, nous avons dégradé le polymère mer PLA d'un média spunbond I/S PP/PLA à l'aide d'une enceinte climatique à haute humidité pour réduire ces propriétés mécaniques. Ainsi, nous avons dégradé les médias pendant une durée de 2, 4, 7 et 9 jours avant de les hydrofracturer. Les résultats montrent que pour une même pression d'hydroliage de 100 et 200 bars, le taux de fracturation est beaucoup plus important sans détérioration du voile.

### 3.4 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Ce chapitre détaille l'étude et le développement médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés en nous concentrant sur l'hydrofracturation et la qualité du média. Pour cela, nous avons développé une approche d'estimation du taux de fracturation à partir de la mesure de la surface spécifique. Puis, les observations MEB et les caractérisations de la masse surfacique, l'épaisseur, la compacité et la perméabilité nous ont permis d'évaluer la qualité du voile.

Dans un premier temps, nous avons étudié l'influence du couple îles/mer, du ratio île/mer et de la pression des jets d'eau sur l'hydrofracturation des filaments îles-en-mer, sur les caractéristiques de structures du média et sur la qualité du média.

Cela nous a permis de montrer que l'augmentation du taux de fracturation lorsque la pression des jets d'eau augmente est fortement liée au ratio îles/mer. Par exemple, le taux de fracturation d'un média à fibres îles-en-mer de ratio îles/mer de 25/75 est inférieur à 30% alors qu'un média à fibres îles-en-mer de ratio îles/mer 75/25 peut atteindre des taux de fracturation de 62%. De plus, nous avons comparé le taux de fracturation de plusieurs couples îles/mer. Les résultats suggèrent que pour générer un taux de fracturation important, le polymère mer doit être faiblement résistant au choc (cassant) tel que le PLA même si un polymère peu résistant à la rupture en traction tel que le PE peut suffire pour atteindre un taux de fracturation supérieur à 50%. Enfin, l'étude des caractéristiques de structures et de la qualité du voile a montré que l'utilisation de jets d'eau à hautes pressions trop importantes détériore le voile en écartant les fibres et en formant des trous. Toutefois, la pression des jets d'eau maximale avant détérioration du voile dépend du couple de polymères. Ainsi pour les couples I/S PA6/PE, PE/PA6 et PP/PLA, elle est respectivement de 250, 100 et 200 bars pour un taux de fracturation respectivement de 53%, 18% et 54%. Une première analyse suggère que ce phénomène reste limité dans le cas où la mer est un polymère capable d'absorber les chocs tels que le PE.

Dans un second temps, nous avons développé une méthode pour obtenir un média spunbond îles-en-mer hydrofracturé en utilisant de faibles pressions de jets d'eau. Cette approche se fonde sur la dégradation du polymère mer PLA afin de diminuer les propriétés mécaniques des filaments. Pour cela, des médias spunbond I/S PP/PLA sont placés dans une enceinte climatique à haute humidité pendant une durée de 2, 4, 7 et 9 jours. Après avoir dégradé les médias, nous les avons hydrofracturés avec 4 injecteurs à hautes pressions. Les résultats montrent que pour une même pression de jets d'eau de 100 et 200 bars, le taux de fracturation est élevé. Par exemple, il atteint 75% dans le cas d'une dégradation de 9 jours et une pression de jets d'eau de 200 bars. De plus, les observations MEB suggèrent aucune détérioration des voiles.

Cette méthode permet donc de produire des médias spunbond îles-en-mer à haut taux de fracturation tout en utilisant de pressions faibles. Cela réduit à la fois l'énergie nécessaire à l'hydrofracturation et prévenir toute détérioration du voile.

En définitive, cette étude établit des critères pour le choix du polymère mer, du ratio îles/mer et de l'influence des jets d'eau à hautes pressions sur la qualité du voile tout en illustrant une méthode d'évaluation quantitative de l'hydrofracturation. De plus, la dégradation de l'élément mer constitue une nouvelle approche intéressante, car elle permet d'obtenir un taux de

fracturation important tout en minimisant la pression des jets d'eau. Cela permet de prévenir la déstructuration du média et réduire la dépense énergétique.

À partir de ces résultats, le prochain objectif est de produire des médias à fibres ultrafines avec le diamètre des îles le plus petit possible. Une des pistes est l'augmentation du nombre d'îles en investissant dans une nouvelle filière spunbond bicomposante, ce qui permettra de créer des îles de diamètre inférieur à 1  $\mu\text{m}$  toutes choses égales par ailleurs. Une autre piste est la réduction du diamètre des filaments avant hydrofracturation. Cela nécessiterait alors des études sur l'optimisation du procédé spunbond bicomposant îles-en-mer afin de réduire le diamètre des filaments.

Une autre perspective serait des études fondamentales plus approfondies sur les mécanismes mécaniques de l'hydrofracturation afin de mieux comprendre le rôle des différents paramètres procédé et permettrait d'optimiser le choix des polymères et le ratio îles/mer.

# Chapitre 4: CARACTERISATIONS ET MODELISATION DES PROPRIETES DE FILTRATION DES MEDIAS DEVELOPPES AVEC PRISE EN COMPTE DE L'HETEROGENEITE

À travers les études du chapitre 2 et 3, nous avons développé des médias fibreux avec des caractéristiques très différentes en termes de diamètre moyen de filaments, d'épaisseur, de masse surfacique et de compacité. Parmi ces échantillons, des médias possèdent des filaments ultrafins. Dans ce chapitre, nous allons caractériser les différents médias fibreux produits d'une part pour valider l'intérêt des fibres ultrafines et d'autre part de comparer les performances de filtration des médias meltblown, « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. La caractérisation des performances de filtration des médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés a été réalisée dans un but de comparaison, mais sachant qu'ils n'ont pas été optimisés pour la filtration (diamètre des îles supérieures à 1  $\mu\text{m}$ ...), ils constituent le minimum de performances possibles pour ce type de médias.

Après avoir caractérisé nos médias fibreux, nous avons modélisé les performances de filtration. La modélisation des performances de filtration, efficacité initiale et perméabilité/perte de charge permet de prédire les performances à partir d'une structure donnée, de connaître l'influence des caractéristiques de structures sur les performances de filtration, à dimensionner une structure ou encore optimiser une structure pour une application visée. La modélisation est donc un outil versatile qui permet à la fois d'étudier les mécanismes, d'optimiser et de dimensionner une structure. Dans la littérature, il existe de nombreux modèles analytiques qui proposent de prédire les performances de filtration à partir des caractéristiques de structures. L'inconvénient de ces modèles est qu'ils supposent un média parfaitement homogène c'est-à-dire avec une répartition de matière homogène (absence de variation locale d'épaisseur, de compacité et de masse surfacique) et une distribution de diamètre des filaments monodisperse. À travers les chapitres précédant, nous avons vu que chaque procédé ou méthode de fabrication de médias fibreux produit des hétérogénéités. En effet, les médias meltblown présentent une répartition de fibres non homogènes ainsi qu'une distribution de fibres polydisperse. Quant aux médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés, ils présentent des hétérogénéités liées à l'étape d'hydroliage et la fracturation des îles.

Afin de caractériser les performances de filtration, nous commencerons par décrire le banc de filtration utilisé pour la mesure de l'efficacité et la perte de charge. Ensuite, nous validerons l'intérêt des fibres ultrafines en analysant les performances de filtration des médias « nano » meltblown à fibres ultrafines. Enfin, nous comparerons les performances de filtration (efficacité et perte de charge) des différents médias produits entre eux puis par rapport à la norme FFP des masques respiratoires.

Afin de modéliser les performances de filtration, nous utiliserons les modèles « classiques » de perméabilité de la littérature (Modèle de Davies, Modèle de Jackson & James) et un modèle qui prend en compte la polydispersion des filaments (Modèle de Sakano et al.). Ensuite, nous testerons les modèles « classiques » d'efficacité pour montrer les limites de ces modèles. Enfin, nous appliquerons un facteur de correction, fondé sur une mesure de perméabilité, aux modèles « classiques » d'efficacité pour améliorer leur précision en prenant en compte l'hétérogénéité.

## 4.1 CARACTERISATION DES PROPRIETES DE FILTRATION

### 4.1.1 DESCRIPTION DU BANC DE FILTRATION

Le banc de filtration du LRGP utilisé pour la mesure de la perméabilité et de l'efficacité est illustré à la Figure 4-1. Le principe du banc consiste à faire circuler un flux d'air contenant des aérosols solides à travers un média filtrant. Les mesures de perméabilité et d'efficacité sont réalisées respectivement à l'aide d'un capteur de pression différentiel et de deux cannes de prélèvement situés en amont et en aval du filtre relié à un compteur de particules PALAS WELAS 2100. Un débitmètre Brooks 5853S permet de contrôler le débit d'air. Lors des mesures de perméabilité et d'efficacité, l'échantillon à tester est placé dans un porte-filtre circulaire équipé d'une grille support métallique avec une surface de filtration de 100 cm<sup>2</sup>.

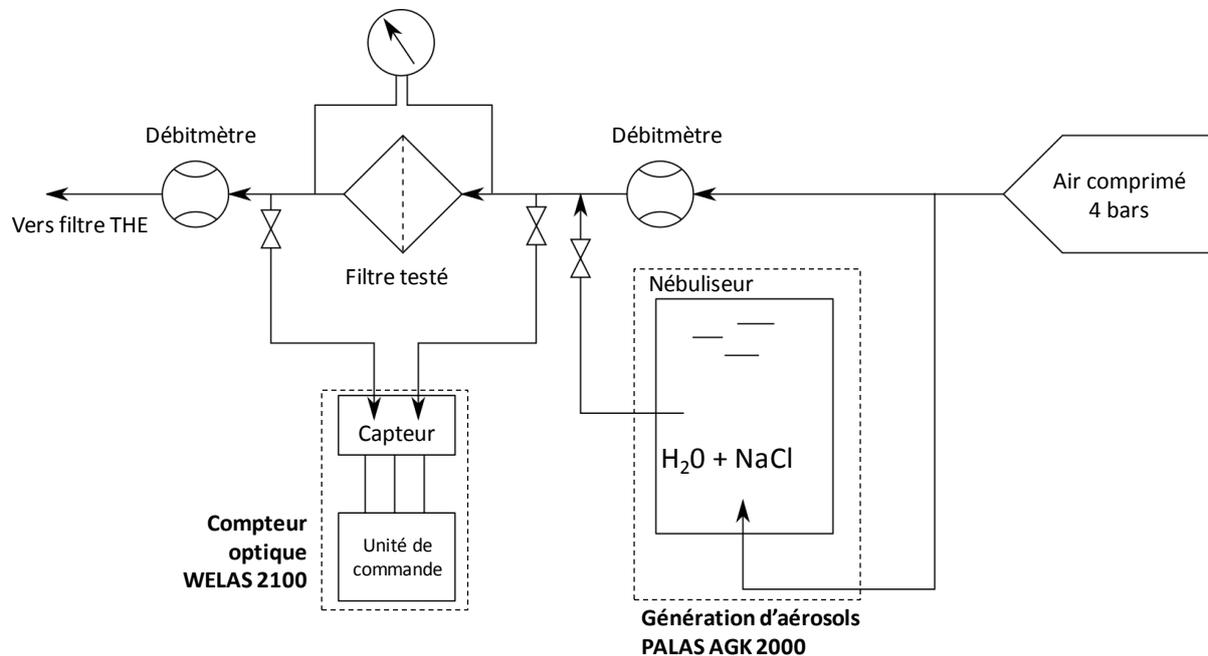


Figure 4-1 – Banc d'essai de filtration du LRGP

Pour les mesures d'efficacité, nous avons utilisé des particules sel (NaCl). Pour cela, des cristaux de sels sont dissous dans de l'eau distillée afin de former une solution à une concentration de 2 g/L. Par nébulisation de cette solution de NaCl dans le générateur AGK 2000 PALAS, des gouttelettes sont produites puis séchées par un débit d'air sec de dilution favorisant la cristallisation des particules solides de NaCl.

La distribution granulométrique en nombre de l'aérosol ainsi produit est déterminée à l'aide d'un compteur optique WELAS PALAS 2100. La Figure 4-2 représente la distribution granulométrique de particules de sels ainsi obtenues à la sortie du nébuliseur. La distribution de taille des particules est comprise entre 0,2 et 1 µm avec un mode à 0,3 µm.

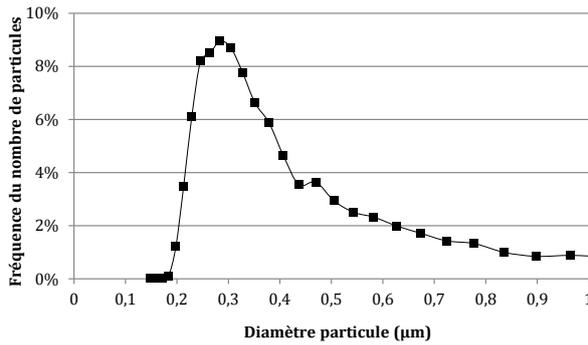


Figure 4-2 – Distribution du nombre de particules de NaCl en fonction du diamètre des particules

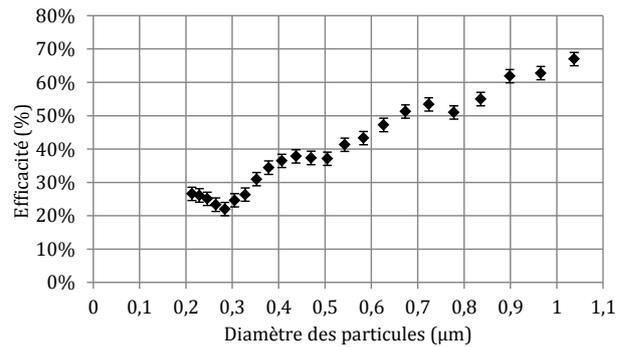


Figure 4-3 – Efficacité spectrale d'un média fibreux

#### 4.1.1.1 Méthode de mesure de la perte de charge et du calcul de la perméabilité $k$ du média

Après avoir placé l'échantillon dans le porte-filtre, la perte de charge est mesurée à un débit de 0 à 100 L/min, à l'aide d'un capteur de pression différentielle Almeno FDA602S2K associé à un afficheur Almeno Alhborn 2690. Ce capteur est capable de mesurer des différences de pressions (perte de charge) entre 0 et 250 Pa pour une précision de +/- 0,5 Pa. À partir de ces mesures de perte de charge et de la loi de Darcy (équation (1-6)), la perméabilité  $k$  est calculée.

#### 4.1.1.2 Méthode de mesure de l'efficacité du média

De par leur mode de fabrication, les médias peuvent être plus ou moins chargés électriquement et de fait modifier leur efficacité. Afin de ne prendre en compte que la structure du média dans l'évaluation de leurs propriétés, ils ont été déchargés par trempe dans une solution d'isopropanol suivi d'un séchage pendant 24h selon la procédure décrite dans la norme EN779.

Pour estimer l'efficacité d'un média, nous avons mesuré le nombre de particules en amont et aval d'un média pour chaque tranche granulométrique. Des mesures préalables ont montré que l'efficacité de la grille du porte-filtre est négligeable (< 1%). L'efficacité  $E$  pour chaque diamètre de particules  $d_p$  se calcule alors selon l'équation (4-1).

$$E(d_p) = \frac{N_{amont}(d_p) - N_{aval}(d_p)}{N_{amont}(d_p)} \quad (4-1)$$

Avec :

$N_{amont}(d_p)$  : Nombre de particules de diamètre  $d_p$  en amont du filtre

$N_{aval}(d_p)$  : Nombre de particules de diamètre  $d_p$  en aval du filtre

Dans le cadre de nos essais, la vitesse de filtration a été fixée à 5 cm/s car elle correspond à la vitesse de filtration utilisée pour l'analyse des filtres à très haute efficacité (THE).

Les particules de NaCl générées sont fixées à 50 000 particules par centimètre cube afin de minimiser l'agglomération et le colmatage du filtre pendant les mesures d'efficacité. Pour cela, le flux d'air contenant des particules solides générées par le nébuliseur est dilué dans un flux d'air comprimé propre.

Pour chaque échantillon, nous avons effectué 3 prélèvements de particules en amont de 30 secondes et 3 prélèvements de particules en aval de 30 secondes afin d'estimer l'efficacité moyenne du filtre. Enfin, nous nous sommes concentrés sur l'efficacité pour un diamètre de 0,3  $\mu\text{m}$ , car l'efficacité de médias produits est minimum pour ce diamètre de particules (Figure 4-3).

#### 4.1.2 VALIDATION DE L'INTERET DES FIBRES ULTRAFINES

Durant notre étude, seules quelques structures meltblown ont un diamètre moyen ou médian inférieur à 1  $\mu\text{m}$ , soit des fibres ultrafines. Ainsi, pour observer les effets de glissements, nous nous sommes focalisés sur les structures meltblown uniquement et non sur les structures spunbond îles-en-mer fracturées par hydroliage.

Tableau 4-1 – Caractéristiques des médias meltblown pour l'observation de l'effet de glissement

Référence	Médiane des filaments ( $\mu\text{m}$ )	Masse surfacique ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	Epaisseur (mm)	Compacité (%)	Efficacité dp: 0,3 $\mu\text{m}$ (%)	Perte de charge à 5cm/s (Pa)	Perte de charge à iso efficacité (E=80%)	Efficacité dp:0,3 $\mu\text{m}$ à iso perte de charge ( $\Delta\text{P}=20$ Pa)
1	1,24	17	0,28	7%	39%	19	62	54%
2	1,72	15	0,23	7%	17%	10	90	42%
3	1,24	14	0,22	7%	49%	30	72	49%
4	1,47	14	0,23	7%	29%	16	76	47%
5	1,26	16	0,25	7%	18%	8	60	55%
6	0,98	15	0,23	7%	31%	15	65	52%
7	1,47	17	0,27	7%	13%	8	90	42%
8	1,01	12	0,19	7%	52%	35	77	47%
9	1,72	17	0,27	7%	16%	9	87	43%
10	1,66	15	0,22	7%	19%	13	103	37%
11	3,57	18	0,27	7%	4%	5	172	25%
12	1,92	17	0,25	7%	7%	10	216	20%
13	1,44	17	0,25	7%	31%	18	78	46%
14	2,19	16	0,24	7%	15%	12	112	35%
15	1,09	17	0,26	7%	31%	20	87	43%
16	1,98	12	0,18	7%	7%	3	63	54%
17	0,73	15	0,22	7%	30%	11	50	62%
18	1,14	13	0,19	7%	16%	7	65	52%
19	1,74	15	0,22	7%	23%	9	58	56%
20	1,47	19	0,26	7%	26%	15	79	46%
21	1,79	18	0,25	7%	8%	7	136	30%

Afin d'observer l'effet de glissement, l'indicateur le plus utilisé est le facteur de qualité ou figure de mérite qui est le ratio entre l'efficacité et la perte de charge du média fibreux (Podgórski et al. 2006; Wang et al. 2008). Il permet de comparer le rapport efficacité/perte de charge pour différentes structures. Cependant, son utilisation directe présente deux inconvénients majeurs. Pour un même facteur de qualité, il est possible d'avoir des structures (compacité, épaisseur et diamètre de filaments) ou des couples efficacité/pertes de charge très différents ce qui empêche toute interprétation des résultats. En développant le calcul du facteur de qualité, il apparaît que l'épaisseur n'intervient pas dans le calcul du facteur de qualité ainsi, seuls le diamètre des filaments et la compacité jouent en rôle (équation (4-2)).

$$\text{Facteur de qualité } Q = \frac{-\ln(1 - E)}{\Delta P} = \frac{4\alpha Z\eta_f}{(1 - \alpha)\pi d_f} * \frac{f(\alpha)d_f^2}{4\mu ZV_f} = \frac{\alpha\eta_f}{(1 - \alpha)\pi} \frac{f(\alpha)d_f}{\mu V_f} \quad (4-2)$$

Pour résoudre les problèmes mentionnés ci-dessus, nous avons sélectionné des échantillons qui possèdent une même compacité de 7% et des couples efficacité/perte de charge semblables. Les 21 échantillons sélectionnés sont détaillés dans le Tableau 4-1.

À partir de ces structures meltblown, nous avons représenté le facteur de qualité en fonction du diamètre des filaments (Figure 4-4). Les résultats montrent que le facteur de qualité augmente lorsque le diamètre des fibres diminue. Cette tendance est plus marquée pour des diamètres de fibres inférieurs à 2 µm où l'on passe d'un facteur de qualité proche de 0,01 à un facteur de qualité supérieure à 0,03 pour des diamètres inférieurs à 1 µm. Cela illustre donc l'effet de glissement qui permet d'obtenir un meilleur compromis efficacité/perte de charge lorsque le diamètre des filaments diminue. Ces résultats confirment les résultats de Lalagari et al., 2013, qui observent une augmentation du facteur de qualité pour des diamètres de filaments meltblown compris entre 0,5 et 0,7 µm (Lalagiri et al. 2013).

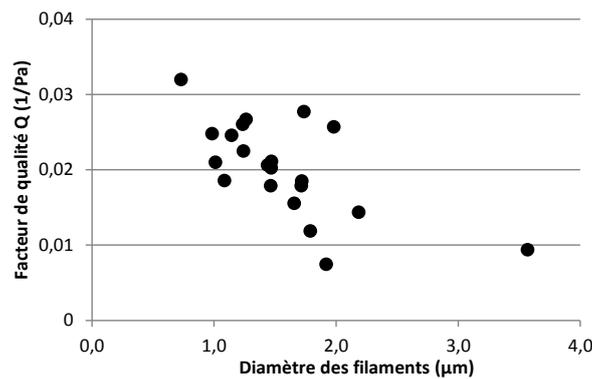


Figure 4-4 – Facteur de qualité en fonction du diamètre des filaments

Une autre manière de représenter les résultats est de recalculer l'efficacité des échantillons pour une même perte de charge ou recalculer la perte de charge pour une même efficacité. Pour recalculer l'efficacité pour une même perte de charge, nous calculons l'épaisseur nécessaire  $Z_{multicouche}$  pour obtenir une perte de charge visée  $\Delta P_{base}$  à l'aide de l'équation (4-3).

Puis nous recalculons l'efficacité expérimentale  $E_{\text{expérimentale}}$  pour l'épaisseur  $Z_{\text{multicouche}}$  déterminée avec l'équation (1-14) afin d'obtenir l'efficacité à iso perte de charge  $E_{\text{iso perte de charge}}$  avec l'équation (4-4).

$$Z_{\text{multicouche}} = \frac{\Delta P_{\text{base}}}{\Delta P_{\text{expérimentale}}} * Z_{\text{monocouche}} \quad (4-3)$$

Avec :

$E_{\text{monocouche}}$  : épaisseur monocouche utilisée pour la mesure de l'efficacité expérimentale  $E_{\text{expérimentale}}$  et de la perte de charge expérimentale  $\Delta P_{\text{expérimentale}}$

$\Delta P_{\text{expérimentale}}$  : Perte de charge expérimentale pour une couche de média

$$E_{\text{iso perte de charge}} = 1 - (1 - E_{\text{expérimentale}})^{\frac{Z_{\text{multicouche}}}{Z_{\text{monocouche}}}} \quad (4-4)$$

$$E_{\text{iso perte de charge}} = 1 - (1 - E_{\text{expérimentale}})^{\frac{\Delta P_{\text{base}}}{\Delta P_{\text{expérimentale}}}}$$

Une démarche équivalente avec le calcul du nombre de couches pour atteindre une efficacité donnée  $E_{\text{base}}$  permet d'obtenir la perte de charge pour une même efficacité  $\Delta P_{\text{iso efficacité}}$  selon l'équation (4-5).

Ainsi, à l'aide des équations (4-4) et l'équation (4-5), nous avons recalculé respectivement l'efficacité des échantillons pour une perte de charge de 20 Pa ( $\Delta P_{\text{base}}$ ) et la perte de charge des échantillons pour une efficacité de 80% ( $E_{\text{base}}$ ).

$$\Delta P_{\text{iso efficacité}} = \Delta P_{\text{expérimentale}} \frac{\ln(1 - E_{\text{base}})}{\ln(1 - E_{\text{expérimentale}})} \quad (4-5)$$

Avec :

$E_{\text{iso perte de charge}}$  : Efficacité recalculée pour une perte de charge de base ( $\Delta P_{\text{base}}$ )

$E_{\text{expérimentale}}$  : efficacité mesurée de l'échantillon

$\Delta P_{\text{base}}$  : Perte de charge de référence pour le calcul de l'efficacité à une même perte de charge ( $E_{\text{iso perte de charge}}$ )

$\Delta P_{\text{expérimentale}}$  : Perte de charge mesurée de l'échantillon

$\Delta P_{\text{iso efficacité}}$  : Perte de charge recalculée pour une même efficacité ( $E_{\text{base}}$ )

$E_{\text{base}}$  : Efficacité de référence pour le calcul de la perte de charge à une même efficacité ( $\Delta P_{\text{iso efficacité}}$ )

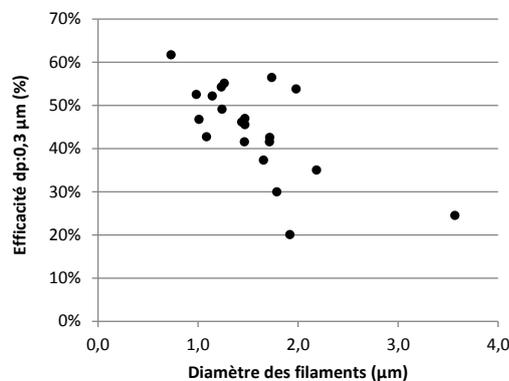


Figure 4-5 – Evolution de l'efficacité en fonction du diamètre des filaments pour une même perte de charge (20 Pa)

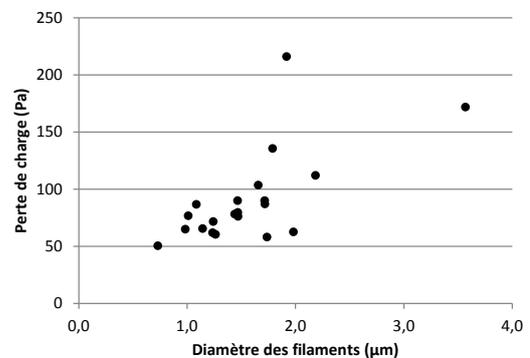


Figure 4-6 – Evolution de la perte de charge en fonction du diamètre des filaments pour une même efficacité de 80%

Nous avons représenté l'efficacité des échantillons pour une même de charge en fonction du diamètre des filaments (Figure 4-5) et la perte de charge pour une même efficacité en fonction du diamètre des fibres (Figure 4-6). Cette nouvelle visualisation montre que l'efficacité augmente lorsque le diamètre des filaments diminue pour une même perte de charge ou que la perte de charge diminue lorsque le diamètre des filaments diminue pour une même efficacité. Ces deux visualisations de l'évolution des propriétés de filtration en fonction du diamètre des filaments montrent que l'effet de glissement augmente lorsque le diamètre des filaments diminue comme la théorie le suggère. De plus, bien que l'effet de glissement ait été déjà été mis en avant avec des structures avec des filaments compris entre 50 et 300 nm (Hung & Leung 2011; Wang et al. 2008). Ces résultats suggèrent que l'effet de glissement se fait sentir pour des diamètres de filaments inférieurs à 2  $\mu\text{m}$  avec un effet d'autant plus important que les filaments seront fins. Par conséquent, produire des fibres submicroniques comprises entre 0,5 et 1  $\mu\text{m}$  permet d'atteindre des propriétés de filtration suffisantes en fonction des applications visées.

### 4.1.3 PROPRIETES DE FILTRATION DES MEDIAS PRODUITS

#### 4.1.3.1 Bornes des caractéristiques des médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés testés en filtration

Nous avons mesuré la perméabilité de 108 échantillons médias meltblown et 62 spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Les caractéristiques des échantillons sont regroupées dans l'annexe A (Tableaux A-1 et A-2) et le Tableau 4-2 regroupe les bornes des caractéristiques des différents médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés dont la perméabilité a été mesurée.

Tableau 4-2 – Récapitulatif des bornes des caractéristiques et des simulations de la perméabilité pour les médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés

		Minimum	Maximum
<b>Caractéristiques de structures "nano" meltblown (108 échantillons)</b>	<b>Diamètre moyen des fibres (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	0,7	9,8
	<b>Médiane des filaments (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	0,6	9,8
	<b>Ecart-type (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	0,2	4,1
	<b>Espace interquartile (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	0,2	4,6
	<b>Compacité (%)</b>	4%	16%
	<b>Epaisseur (mm)</b>	0,1	0,5
	<b>Masse surfacique (<math>\text{g}/\text{m}^2</math>)</b>	8,8	37,6
	<b>Perméabilité expérimentale (<math>\text{m}^2</math>)</b>	1,9E-12	5,2E-10
<b>Caractéristiques de structures spunbond îles-en-mer hydrofracturés (62 échantillons)</b>	<b>Diamètre des fibres - df (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	1,8	10,2
	<b>Surface spécifique (<math>\text{m}^2/\text{g}</math>)</b>	0,39	2,24
	<b>Masse surfacique (<math>\text{g}/\text{m}^2</math>)</b>	31	105
	<b>Epaisseur (mm)</b>	0,2	0,8
	<b>Compacité</b>	9%	20%
	<b>Perméabilité expérimentale (<math>\text{m}^2</math>)</b>	5,0E-12	9,8E-11

Nous avons également déterminé l'efficacité de 71 médias « nano » meltblown et 68 médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Les caractéristiques des médias sont regroupées dans l'annexe B (Tableaux B-1 et B-2). Le Tableau 4-3 regroupe les bornes des caractéristiques pour les médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. On remarque que les caractéristiques des médias testés sont très variées. Par exemple, dans le cas des structures « nano » meltblown, le diamètre varie entre 0,8 et 5,9  $\mu\text{m}$ , la compacité varie de 4% à 16% ou encore l'efficacité comprise entre 4% et 65%.

Tableau 4-3 – Récapitulatif des bornes des caractéristiques et des simulations de l'efficacité pour les médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydro-fracturées

		Minimum	Maximum
<b>Caractéristiques de structures "nano" meltblown (71 échantillons)</b>	<b>Diamètre moyen des fibres (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	0,8	5,9
	<b>Compacité (%)</b>	4%	16%
	<b>Epaisseur (mm)</b>	0,1	0,5
	<b>Masse surfacique (<math>\text{g}/\text{m}^2</math>)</b>	10	38
	<b>Efficacité à 0,3 <math>\mu\text{m}</math></b>	4%	65%
<b>Caractéristiques de structures spunbond îles-en-mer hydrofracturés (68 échantillons)</b>	<b>Diamètre moyen des fibres - df (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	1,8	10,2
	<b>Surface spécifique (<math>\text{m}^2/\text{g}</math>)</b>	0,4	2,2
	<b>Compacité (%)</b>	9%	20%
	<b>Epaisseur (mm)</b>	0,2	0,8
	<b>Masse surfacique (<math>\text{g}/\text{m}^2</math>)</b>	31	105
	<b>Efficacité à 0,3 <math>\mu\text{m}</math></b>	0%	56%

#### 4.1.3.2 Cartographie des propriétés de filtration

À partir de la caractérisation des propriétés de filtration, nous avons représenté l'efficacité pour des particules de NaCl de 0,3  $\mu\text{m}$  en fonction de la perte de charge à une vitesse de filtration de 5 cm/s à la Figure 4-7. La figure compare les échantillons « nano » meltblown à filaments dont le diamètre médian (dM), ou médiane, est inférieur 1  $\mu\text{m}$ , les échantillons meltblown avec un diamètre médian entre 1 et 1,5  $\mu\text{m}$ , les échantillons meltblown avec un diamètre médian supérieur à 2  $\mu\text{m}$  et les échantillons spunbond îles-en-mer. La comparaison des échantillons meltblown montre qu'il y a peu de différences de propriétés entre les médias « nano » meltblown et les médias meltblown avec un diamètre médian compris entre 1 et 1,5  $\mu\text{m}$ . Cela peut s'expliquer par la distribution de diamètres importants des médias ainsi même si le diamètre médian est supérieur à 1  $\mu\text{m}$ , une fraction importante des fibres est submicronique et possède donc les propriétés des médias « nano » meltblown. En revanche, les médias meltblown avec un diamètre médian supérieur à 1,5  $\mu\text{m}$  présentent une efficacité plus faible, mais aussi une perte de charge plus faible. Les médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés possèdent soit une efficacité faible et une perte de charge faible soit une efficacité intermédiaire, mais avec une perte de charge importante.

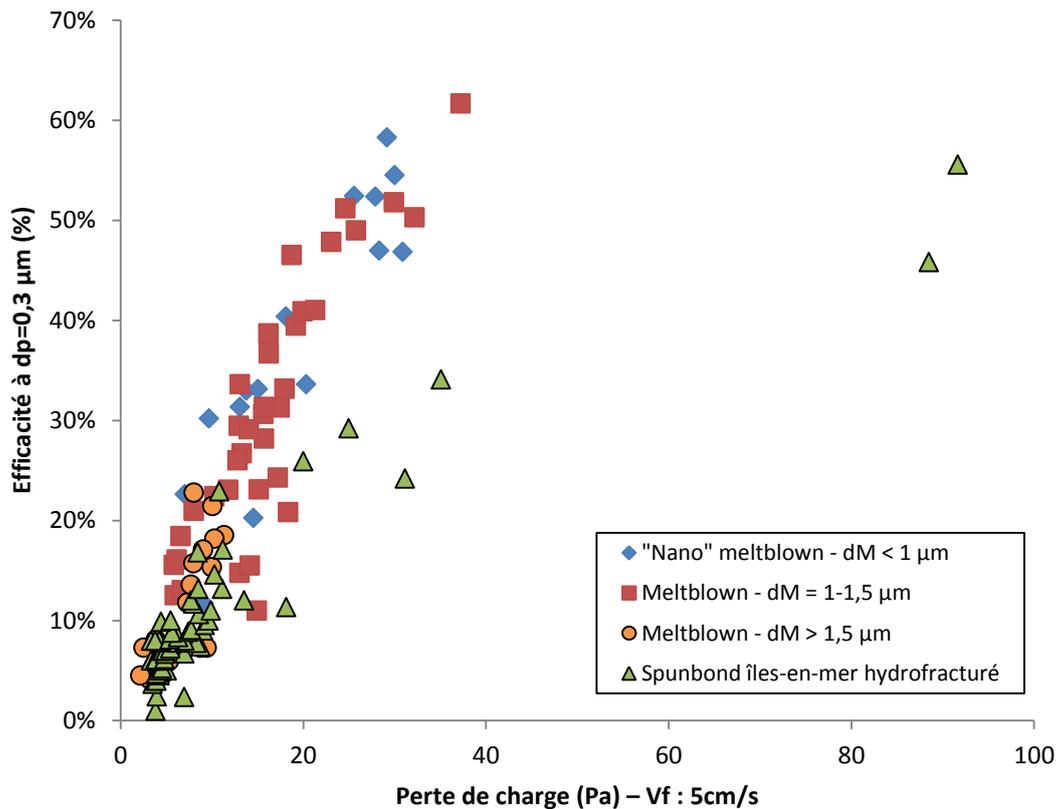


Figure 4-7 – Efficacité en fonction de la perte de charge pour les médias meltblown avec des fibres dont le diamètre médian (dM) inférieur à 1 µm, le diamètre médian compris entre 1 et 1,5 µm et le diamètre médian est supérieur à 1,5 µm et les médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés

#### 4.1.3.3 Efficacité recalculée pour une même perte de charge

Afin de comparer tous les médias produits et testés, nous avons recalculé les efficacités pour une même perte de charge comme dans la partie §4.1.2. Nous avons choisi de comparer nos échantillons à une vitesse de filtration de 15 cm/s (débit de 160 L/min pour une surface de 180 cm<sup>2</sup>) et de nous fixer une perte de charge de 3 mbar, car ces conditions correspondent aux conditions de la norme FFP des masques respiratoires avec une surface de filtration de 180 cm<sup>2</sup>. Cela nous permettra de déterminer les médias qui atteignent les spécifications de la norme FFP. En plus de l'efficacité, nous avons calculé la masse surfacique de la superposition du nombre de couches de médias permettant d'atteindre une perte de charge de 3 mbar.

La Figure 4-8 représente alors l'efficacité en fonction de la masse surfacique ainsi que les limites d'efficacité FFP1, FFP2 et FFP3.

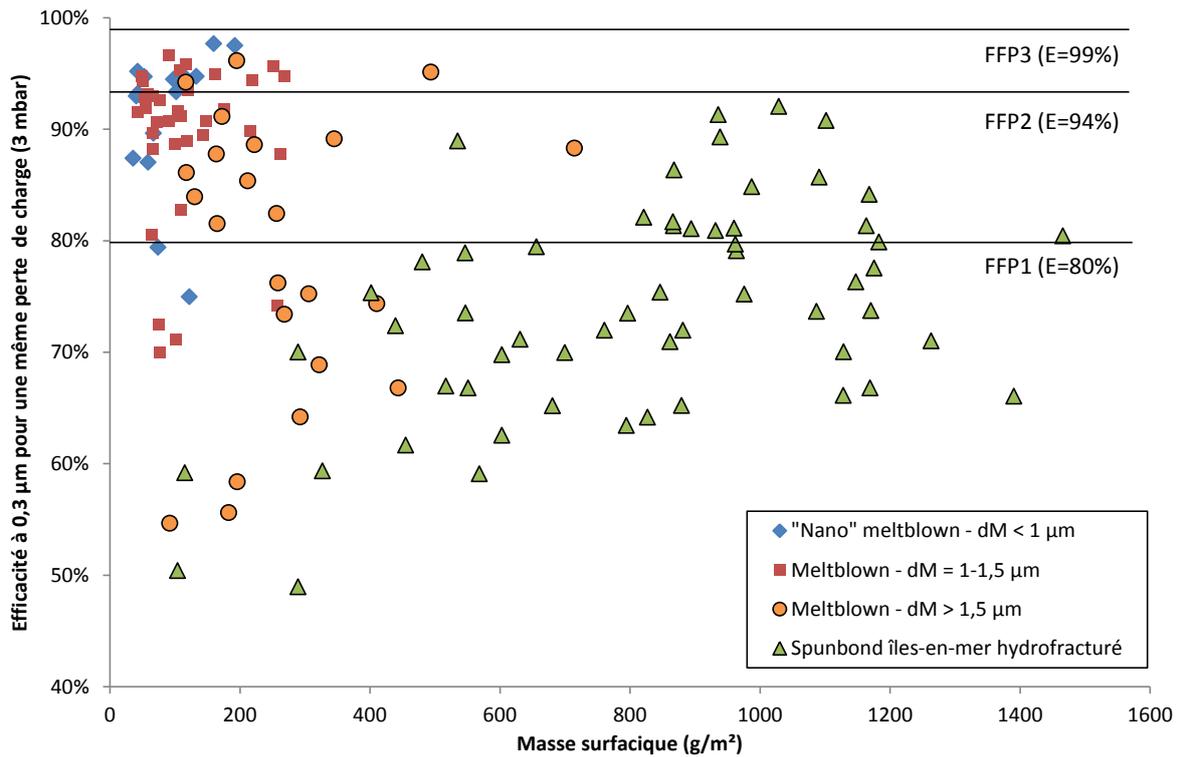


Figure 4-8 – Efficacité recalculée en fonction de la masse surfacique d'une superposition de médias atteignant une perte de charge de 3 mbar pour les médias « nano » meltblown, meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés

Bien que ces résultats soient théoriques, nous voyons qu'un certain nombre d'échantillons atteignent les propriétés d'efficacité FFP1 et FFP2 aussi bien meltblown que spunbond îles-en-mer hydrofracturé. Cependant, les masses surfaciques sont importantes, voire excessives, notamment dans le cas des spunbond îles-en-mer hydrofracturés où la masse surfacique peut atteindre 1500 g/m<sup>2</sup>. En effet, le diamètre des îles reste important, mais les résultats suggèrent un potentiel intéressant pour les structures spunbond îles-en-mer hydrofracturés. On note aussi que les médias meltblown atteignent les propriétés FFP pour des masses surfaciques aussi faible que 36 g/m<sup>2</sup> et peuvent donc théoriquement remplacer certains médias existants.

## 4.2 MODELISATION DES PROPRIETES DE FILTRATION

Dans cette partie, nous commencerons par comparer les modèles de perméabilité aux structures « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Dans le cas des structures « nano » meltblown, nous appliquerons notamment le modèle de Sakano et al., 2000, qui prend en compte la distribution du diamètre des filaments.

Dans un deuxième temps, nous comparerons les modèles d'efficacité avec et sans prise en compte de l'hétérogénéité. La prise en compte de l'hétérogénéité repose sur un facteur de correction  $\beta$  déterminé à partir de mesure de perméabilité.

### 4.2.1 MODELISATION DE LA PERMEABILITE

La perméabilité constitue l'une des deux principales propriétés d'un média fibreux en filtration (§1.2.1). Elle permet d'évaluer la résistance à l'écoulement du média et par conséquent la perte de charge à partir de la loi de Darcy (équation (1-6)) en régime laminaire. De nombreux travaux, détaillés dans le Tableau 1-2, proposent de prédire la perméabilité à partir de modèle analytique.

Afin de déterminer, les modèles les plus pertinents, nous les avons comparés aux perméabilités expérimentales des médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Dans le cas des médias « nano » meltblown, nous utiliserons, notamment, le modèle de Sakano et al. qui prend en compte la polydispersion des fibres que nous avons caractérisé dans le chapitre 2. En revanche, le modèle de Sakano et al. n'a pas été appliqué aux médias spunbond îles-en-mer pour lesquels la caractérisation de la polydispersion des fibres est rendue difficile par la fracturation de la mer.

#### 4.2.1.1 Modélisation de la perméabilité des médias « nano » meltblown

Dans le cas des structures « nano » meltblown, nous avons utilisé le modèle de Davies (Davies 1973) qui est le plus utilisé dans la littérature, le modèle de Jackson et James (Jackson & James 1986) qui est un des plus récents et le modèle de Sakano et al. qui prend en compte la polydispersion des diamètres des fibres (équation (4-6)) (Sakano et al. 2000; Thomas 2001; Gervais 2013).

$$\Delta P = 64\mu Z V_f \frac{\alpha^{3/2}}{1-\alpha} \frac{1}{\sum_{i=1}^N f_i d_i^2} \sum_{i=1}^N \frac{f_i d_i^2}{\sum_{i=1}^N f_i d_i^2}^{3/2} \quad (4-6)$$

Avec :

$\Delta P$  : Perte de charge

$f_i$  : la fraction en nombre des filaments de diamètre de classe  $i$

$d_i$  : le diamètre des fibres moyen de classe  $i$

$N$  : nombre de classe de diamètre de filaments

$Z$  : Epaisseur

$V_f$  : Vitesse de filtration

$\alpha$  : Compacité

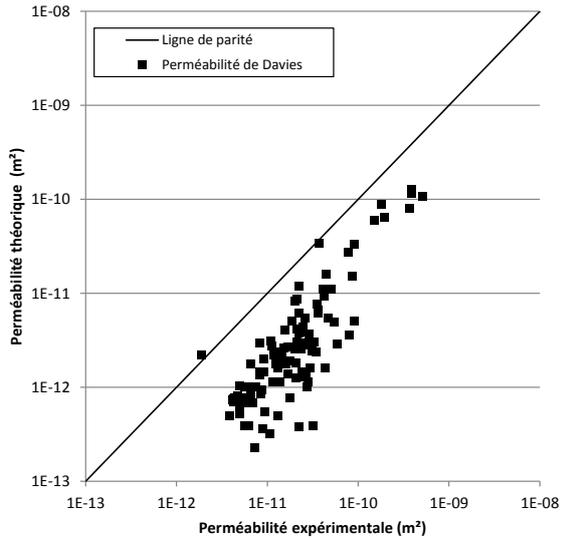


Figure 4-9 - Perméabilité théorique de Davies en fonction de la perméabilité expérimentale

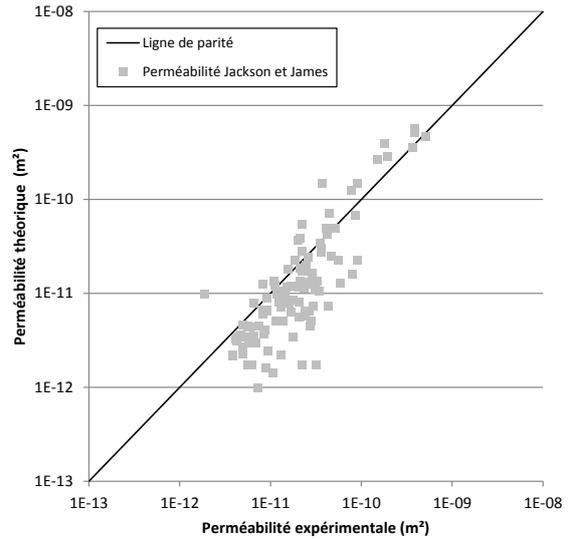


Figure 4-10 - Perméabilité théorique de Jackson et James en fonction de la perméabilité expérimentale

Afin de comparer les données issues de la modélisation aux résultats expérimentaux, nous avons représenté la perméabilité théorique en fonction de la perméabilité expérimentale pour les trois modèles. La ligne de parité correspond aux points où la perméabilité théorique est identique à la perméabilité expérimentale. Ainsi, plus les points d'un modèle sont proches de la ligne de parité et plus le modèle est prédictif.

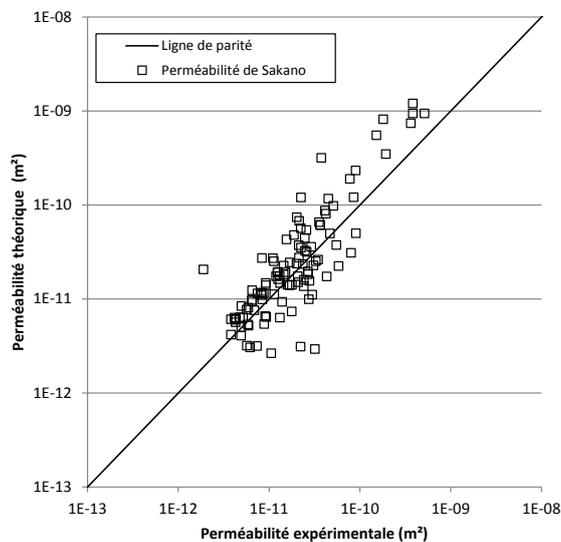


Figure 4-11 - Perméabilité théorique de Sakano et al. en fonction de la perméabilité expérimentale

Les figures 4-9 à 4-11 représentent, respectivement, le modèle de Davies, le modèle de Jackson et James et le modèle de Sakano et al. . Des trois modèles, le modèle de Sakano et al. semble le plus pertinent puisque l'ensemble des points est bien distribué autour de la droite de parité. Le modèle de Davies, quant à lui, sous-évalue plus fortement la perméabilité expérimentale que le modèle de Jackson et James.

Afin de quantifier la dispersion des points, nous avons complété l'analyse visuelle par une mesure de l'erreur relative moyenne selon l'équation (4-7).

$$\text{Erreur relative moyenne} = \frac{1}{\text{Nombre de mesure}} \sum \frac{|E_{\text{théorique}} - E_{\text{expérimentale}}|}{E_{\text{expérimentale}}} \quad (4-7)$$

Les moyennes de la distribution des erreurs relatives des différents modèles sont regroupées dans le Tableau 4-4.

Tableau 4-4 - Ecart relatif moyen entre les perméabilités théoriques et expérimentales (« nano » meltblown)

	Modèles		
	Davies	Jackson et James	Sakano et al.
Ecart relatif moyen	83%	52%	84%
Médiane	85%	47%	48%

La comparaison des erreurs relatives montre que le modèle de Jackson et James est le plus prédictif avec une erreur relative moyenne de 52%. Les modèles de Davies et de Sakano et al. ont une erreur relative proche (respectivement de 83% et 84%). Ce résultat est surprenant, car qualitativement le modèle de Sakano et al. semble être meilleur que le modèle de Davies. Pour comprendre ces résultats, nous avons calculé l'erreur relative de chaque échantillon (4-8) et comparé les distributions des erreurs relatives pour chaque modèle.

$$\text{Erreur relative} = \sum \frac{|E_{\text{théorique}} - E_{\text{expérimentale}}|}{E_{\text{expérimentale}}} \quad (4-8)$$

La Figure 4-12 représente les distributions des erreurs relatives sous forme de boîte à moustache (box plot). Nous voyons que le modèle de Sakano et al. présente quelques points avec une erreur relative très importante par rapport aux autres modèles (> 200%) alors que la médiane (tiret noir de la Figure 4-12 et Tableau 4-4) des valeurs du modèle de Sakano et al. reste proche de la médiane (48%) du modèle de Jackson et James (47%).

Les différences d'erreurs relatives moyennes entre le modèle de Davies et le modèle de Sakano et al. s'expliquent donc par quelques valeurs extrêmes du modèle (points de la boîte à moustache) de Sakano et al. qui faussent la moyenne des erreurs relatives.

Enfin, l'analyse des erreurs relatives montre que pour les 3 modèles, l'erreur relative moyenne ou médiane reste importante (>50%). Ainsi les valeurs prédites ne permettent d'avoir qu'un ordre de grandeur de la perméabilité.

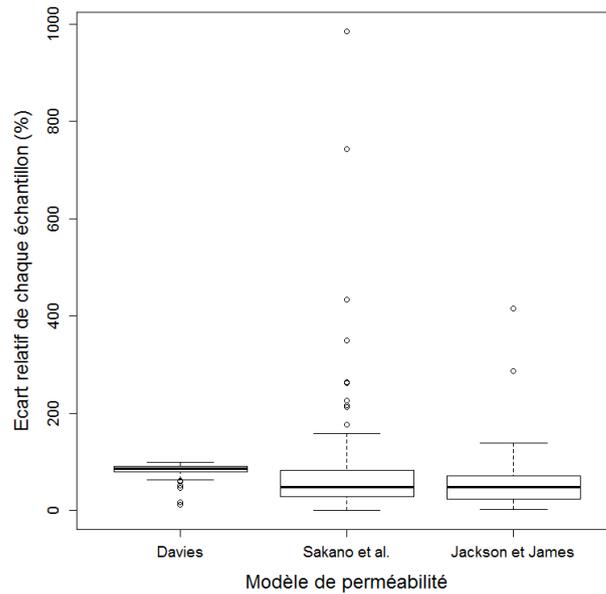


Figure 4-12 – Boîtes à moustache des écarts relatifs des échantillons « nano » meltblown pour le modèle de Davies, de Sakano et al. et de Jackson et James

#### 4.2.1.2 Modélisation de la perméabilité des structures spunbond îles-en-mer fracturées par hydroliage

Dans le cas des structures spunbond îles-en-mer hydrofracturées, nous avons utilisé les modèles de Davies et de Jackson et James et non le modèle de Sakano et al.

En effet, le principal problème avec les structures spunbond îles-en-mer hydrofracturées est la détermination d'un diamètre moyen. Après la fracturation par hydroliage, il est impossible de déterminer une distribution ou un diamètre moyen de filament par simple mesure au microscope. En conséquence, nous avons utilisé la surface spécifique mesurée à l'aide du dispositif BET afin de recalculer un diamètre moyen (§1.1.4.6).

La comparaison des perméabilités théorique et expérimentale montre que les modèles de Davies (Figure 4-13) et de Jackson et James (Figure 4-14) sous-évaluent la perméabilité expérimentale des échantillons. Pour les deux modèles, l'erreur relative moyenne est comprise entre 80% et 83% (Tableau 4-5) ce qui souligne l'écart important entre la perméabilité théorique et la perméabilité expérimentale. La différence entre les résultats théoriques et expérimentaux peut s'expliquer par l'hétérogénéité générée pendant la fracturation des filaments îles-en-mer. En effet, les jets d'eau écartent les fibres modifiant la répartition locale des fibres.

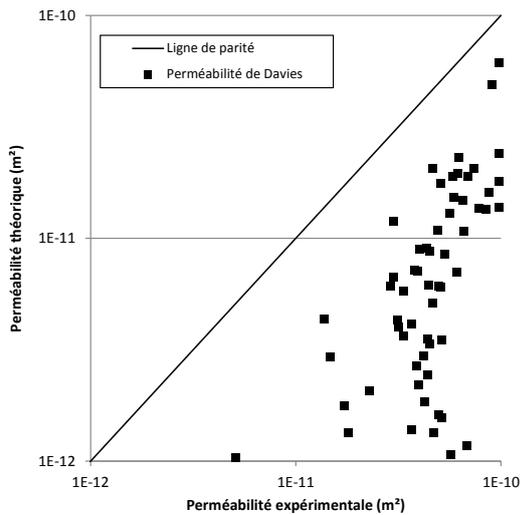


Figure 4-13 - Perméabilité théorique en fonction de la perméabilité expérimentale pour la perméabilité de Davies

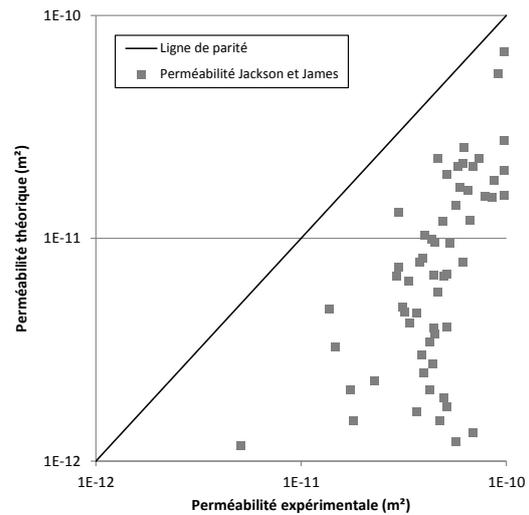


Figure 4-14 - Perméabilité théorique en fonction de la perméabilité expérimentale et la perméabilité de Jackson et James

#### 4.2.1.3 Conclusion de la modélisation de la perméabilité

En définitive, les modèles de perméabilités considèrent une structure fibreuse idéale où le diamètre des filaments, la répartition de la matière, l'épaisseur ou encore la compacité sont uniformes. Dans le cas des échantillons meltblown et îles-en-mer qui présentent des structures hétérogènes, les modèles établis pour des structures uniformes sous-estiment fortement les perméabilités expérimentales. On note aussi que dans le cas des structures meltblown, la prise en compte de la polydispersion des diamètres de fibres n'améliore pas nécessairement les prédictions.

Tableau 4-5 - Ecart relatif moyen entre les perméabilités théoriques et expérimentales (spunbond îles-en-mer hydrofracturées)

	Modèles	
	Davies	Jackson et James
Ecart relatif moyen	83%	80%

#### 4.2.2 MODELISATION DE L'EFFICACITE

L'efficacité constitue un des critères importants dans l'évaluation des propriétés en filtration d'un média fibreux. Comme pour la détermination de la perte de charge, il peut être intéressant de pouvoir prédire l'efficacité d'un média à partir des caractéristiques de sa structure fibreuse. Dans la littérature, de nombreux modèles analytiques (§1.2.2) existent pour prédire l'efficacité de médias fibreux à partir des caractéristiques de la structure (diamètre moyen des filaments, épaisseur, compacité...). Ces modèles considèrent tous un média uniforme et ne prennent pas en compte son hétérogénéité.

Dans cette section, nous allons dans un premier temps, comparer les efficacités calculées par les différents modèles recensés aux résultats expérimentaux obtenus sur les médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Dans un deuxième temps, nous intégrerons dans ces modèles l'hétérogénéité de la structure afin d'en améliorer leur caractère prédictif. Nous avons sélectionné 5 modèles de la littérature qui sont détaillés dans la partie 1.2.2 : les modèles de Miecret-Gustavsson, de Lee-Liu, de Liu-Rubow, de Payet, de Gougeon, de Stechkina et al. et Kirsch et al.

Les simulations de l'efficacité ont été réalisées dans les mêmes conditions que les mesures expérimentales ; à savoir une vitesse de filtration de 5 cm/s pour des particules de NaCl de diamètre égal à 0,3  $\mu\text{m}$ . Pour les médias « nano » meltblown, le diamètre moyen utilisé est la médiane de la distribution des diamètres de filaments. Pour les médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés, le diamètre moyen est utilisé. Il est calculé à partir de la mesure de la surface spécifique (équation (1-4)). Les résultats sont disponibles dans l'annexe B.

#### 4.2.2.1 Modèle d'efficacité sans prise en compte de l'hétérogénéité appliqué sur aux médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés

Dans un premier temps, nous avons comparé les modèles de filtration sans prise en compte de l'hétérogénéité. Pour cela, nous avons représenté l'efficacité théorique pour chaque modèle (Miecret-Gustavsson, Lee-Liu, Liu-Rubow, Payet, Gougeon, Stechkina et al. et Kirsch et al.) en fonction de l'efficacité expérimentale à la Figure 4-15 (a) pour les médias « nano » meltblown et à la Figure 4-15 (b) pour les médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés.

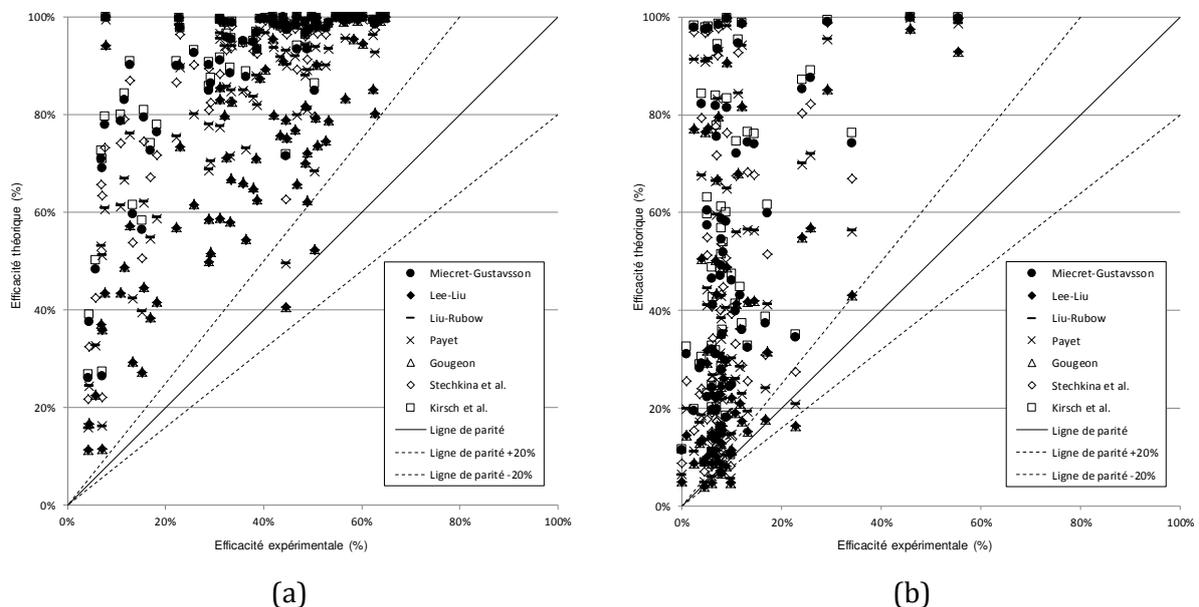


Figure 4-15 – Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour les 5 modèles d'efficacité : le modèle de Miecret-Gustavsson, de Lee-Liu, de Liu-Rubow, de Payet, de Gougeon, de Stechkina et al. et Kirsch et al. pour une vitesse de filtration  $V_f$  de 5 cm/s et un diamètre des particules  $d_p$  de 0,3  $\mu\text{m}$   
 (a) « nano » meltblown (b) spunbond îles-en-mer hydrofracturé

La totalité des modèles testés surestime les efficacités expérimentales. Plusieurs explications peuvent être avancées pour expliquer ce constat. Tout d'abord, tous les modèles ne tiennent pas compte de la distribution granulométrique des fibres. Ils considèrent tous un diamètre de fibre uniforme. Réduire cette distribution de fibres à une valeur moyenne peut être pertinent dans le cas d'une distribution peu dispersée. Par ailleurs, on peut s'interroger sur la notion de diamètre représentatif de la distribution : moyenne arithmétique, géométrique, mode, médiane... Par exemple, pour les médias "nano" meltblown, nous avons utilisé la médiane comme diamètre moyen. De même, le diamètre moyen calculé à partir de la surface spécifique des médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés comporte des incertitudes liées à la mesure de la surface spécifique et reste un diamètre moyen théorique.

Une autre explication plus générale pour expliquer ces disparités entre modèle et expérience concerne la non-uniformité de la structure. Cette hétérogénéité, liée à une mauvaise répartition des fibres lors de la formation du média, peut se manifester en termes de variation locale de l'épaisseur du média, de la compacité, de la masse surfacique, de la taille des fibres ...

Des modèles existent pour prendre en compte plus spécifiquement la polydispersion des fibres (Sakano et al. 2000) ou la variation de la compacité (Shapiro 1996; Dhaniyala & Liu 2001). La prise en compte de la non-homogénéité de la structure est plus complexe à mettre en œuvre puisqu'elle nécessite la connaissance de l'ensemble des paramètres caractérisant la structure à un niveau local qui reste par ailleurs à définir. Une démarche intéressante menée par Yeh et Liu, 1978, et Kirsch *et al.*, 1974a, permet de s'affranchir de cette complexité. Elle s'appuie sur le calcul d'un facteur de correction à partir d'une simple mesure de perméabilité pour corriger l'efficacité des modèles précédents.

#### *4.2.2.2 Modèle d'efficacité avec la prise en compte de l'hétérogénéité appliqué aux médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés*

Les modèles cités précédemment considèrent un média fibreux idéal, c'est-à-dire avec une épaisseur constante, une compacité constante, un diamètre de fibres monodisperse ou encore une répartition de matière uniforme. Dans le cas de médias fibreux réels, ces conditions sont rarement réunies, en raison de la nature du procédé utilisé pour fabriquer les médias fibreux, l'épaisseur, la compacité et la masse surfacique varient localement de manière plus ou moins importante. De plus, certains médias fibreux tels que les médias meltblown possèdent une distribution de diamètre de filament relativement large. Pour toutes ces raisons, on retrouve des écarts entre les efficacités prédites à l'aide des modèles et les efficacités mesurées. Afin de corriger cet écart, plusieurs approches ont été proposées.

Une première approche est celle de Sakano et al. qui prend en compte la polydispersion des fibres (Sakano et al. 2000). Pour cela, les auteurs calculent pour chaque classe de diamètres de fibres l'efficacité qui est additionnée à celle de la classe précédente en la pondérant par la fraction massique (équation (4-9)).

$$E(d_p) = 1 - \exp\left(-\frac{4\alpha Z}{\pi(1-\alpha)} \sum_{j=1}^N \frac{z_j \eta_j(d_p)}{d_{fj}}\right) \quad (4-9)$$

Avec :

$E$  : l'efficacité pour une taille de particules

$z_j$  : la fraction massique des filaments de diamètre de classe  $j$

$d_{fj}$  : le diamètre des fibres moyen de classe  $j$

$N$  : nombre de classes de diamètre de filaments

$\eta_j$  : efficacité unitaire pour des diamètres moyens de la classe  $j$

Cette méthode intègre la polydispersion des fibres, mais ne prend pas en compte l'hétérogénéité liée à la répartition de la matière telle que les variations locales de l'épaisseur, masse surfacique et compacité. Néanmoins, l'application de cette méthode sur une dizaine d'échantillons meltblown montre des résultats incohérents et non précis. Nous avons donc privilégié la deuxième méthode qui se fonde sur un facteur de correction.

Une autre démarche prenant en compte à la fois la polydispersion des fibres et l'hétérogénéité liée à la répartition de matière a été décrite par les travaux de Yeh et Liu et Kirsch et al.. Ils expliquent l'écart entre l'efficacité théorique  $E_{th}$  et l'efficacité expérimentale  $E_{exp}$  par une longueur de fibres unitaires théoriques  $L_{th}$  différentes de la longueur de fibres unitaires réelle du média fibreux  $L_{exp}$  pour les raisons mentionnées ci-dessus (Yeh & Benjamin Y.H. Liu 1974; Kirsch & Zhulanov 1978).

$$\beta = \frac{L_{exp}}{L_{th}} = \frac{F_{th}}{F_{exp}} \quad (4-10)$$

Ainsi, ils proposent de calculer la longueur de fibres unitaire réelle  $L_{exp}$  et de l'appliquer dans les modèles présentés précédemment. Pour cela, ils calculent le ratio entre la longueur de fibre unitaire théorique  $L_{th}$  et la longueur de fibres unitaire réelle  $L_{exp}$  à partir d'une mesure de perte de charge du média fibreux. Ce ratio est appelé facteur  $\beta$ . Plus précisément, Yeh et Liu (Yeh & Benjamin Y.H. Liu 1974) relient le facteur  $\beta$  aux forces de traînée théorique  $F_{th}$  et expérimentale  $F_{exp}$  par l'équation (4-10). Les forces de traînée théoriques  $F_{th}$  et expérimentale  $F_{exp}$  sont calculées respectivement à partir des équations (4-11) et (4-12).

$$F_{th} = \frac{4\pi}{H_{Ye}} \quad (4-11)$$

$$F_{exp} = \Delta P_{exp} * \frac{\pi d_f^2}{4\alpha Z} \quad (4-12)$$

En définitive, le facteur  $\beta$  se résume à l'équation (4-13) en tenant compte de la perte de charge réelle du média fibreux  $\Delta P_{exp}$ .

$$\beta = \frac{L_{exp}}{L_{th}} = \frac{F_{th}}{F_{exp}} = \frac{16}{H_{Ye}} \frac{\alpha Z}{\Delta P_{exp} d_f^2} \quad (4-13)$$

Une fois le facteur  $\beta$  calculé, les auteurs corrigent l'efficacité unitaire selon l'équation (4-14).

$$\eta_{\text{corrigé}} = \eta_{th} * \beta \quad (4-14)$$

#### 4.2.2.3 Application du facteur de correction pour la prise en compte de l'hétérogénéité

Afin de corriger les effets liés à l'hétérogénéité, nous avons suivi la démarche de Yeh et Liu avec le calcul d'un facteur  $\beta$  pour pouvoir corriger l'efficacité théorique. Cependant, nous avons utilisé l'équation (4-15) pour exprimer la force de traînée théorique  $F_{th}$  à partir du facteur adimensionnel  $f(\alpha)$  et utiliser un modèle de perméabilité théorique  $k_{théo}$ . La force de traînée expérimentale a été calculée selon l'équation (4-12).

$$F_{th} = \frac{f(\alpha)_{Davies} \pi \mu U_f}{\alpha} = \frac{4\pi \mu V_f}{d_f^2 \alpha} k_{théo} \quad (4-15)$$

En utilisant la perméabilité théorique  $k_{théo}$  et la perméabilité expérimentale  $k_{exp}$  pour exprimer les forces de traînée, on obtient le facteur  $\beta$  selon l'équation (4-16).

$$\beta = \frac{F_{th}}{F_{exp}} = \frac{4\pi \mu V_f}{d_f^2 \alpha} k_{théo} * \frac{d_f^2 \alpha}{4\pi \mu V_f} \frac{1}{k_{exp}} = \frac{k_{théo}}{k_{exp}} \quad (4-16)$$

Finalement, l'expression de l'efficacité théorique corrigée  $E_{th, cor}$  devient

$$E_{th, cor} = 1 - e^{-4 \frac{\alpha}{(1-\alpha)} \frac{Z}{\pi d_f} \eta_{th, cor}} = 1 - (1 - E_{th})^\beta = 1 - (1 - E_{th})^{\frac{k_{théo}}{k_{exp}}} \quad (4-17)$$

Afin de sélectionner le modèle de perméabilité le plus adapté, nous avons appliqué cette démarche pour la perméabilité calculée par le modèle de Davies et par le modèle de Jackson et James. A titre de comparaison, la Figure 4-16 compare le modèle d'efficacité de Kirsch et al. pour le modèle de perméabilité de Davies (a) et le modèle de perméabilité de Jackson et James (b). Les résultats d'efficacité théorique avec l'utilisation du modèle de perméabilité de Jackson et James surestiment légèrement l'efficacité expérimentale alors que les résultats d'efficacité théorique avec l'utilisation du modèle de perméabilité de Davies sont plus proches de l'efficacité expérimentale avec un écart presque toujours inférieur à 20%.

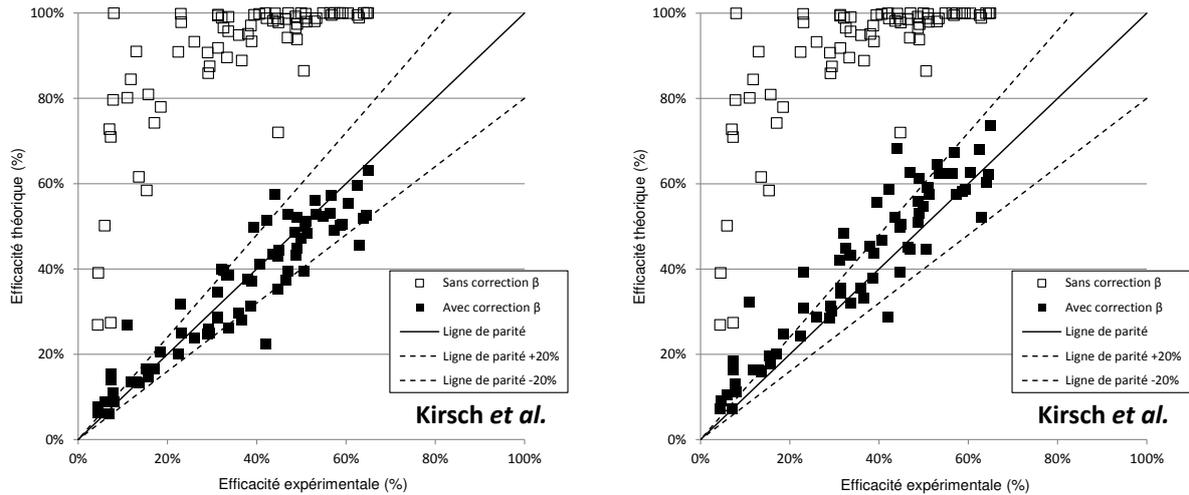


Figure 4-16 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Kirsch et al. ( $V_f=5\text{ cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ ) pour deux modèles de perméabilité  
 (a) modèle de perméabilité de Davies  
 (b) modèle de perméabilité de Jackson et James

De manière quantitative, nous avons calculé les erreurs relatives moyennes des modèles d'efficacité pour le modèle de perméabilité de Davies et de Jackson et James qui sont résumées dans le Tableau 4-6.

Tableau 4-6 - Erreurs relatives des moyennes entre l'efficacité théorique et expérimentale pour les structures meltblown avec le modèle de perméabilité de Davies

	Miecret-Gustavsson	Lee-Liu	Liu-Rubow	Payet	Gougeon	Stechkina et al.	Kirsch et al.
<b>Modèle de perméabilité de Davies</b>	18,6%	56,8%	33,7%	34,1%	56,5%	19,6%	18,7%
<b>Modèle de perméabilité de Jackson et James</b>	26,1%	47,8%	24,0%	24,3%	47,5%	20,9%	27,0%

La comparaison des erreurs relatives moyennes montrent que des valeurs plus faibles pour le modèle de Davies, nous avons donc considéré le modèle de Davies comme modèle de perméabilité théorique pour la suite.

#### 4.2.2.3.1 Modèles d'efficacité avec la prise en compte de l'hétérogénéité appliqués aux médias « nano » meltblown

Dans un premier temps, nous avons appliqué la correction du facteur  $\beta$  aux structures meltblown dont les caractéristiques et les valeurs d'efficacité théoriques et expérimentales sont regroupées dans l'annexe B.

Pour chaque modèle, nous avons représenté l'efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale avec et sans correction du facteur  $\beta$ . Ainsi la Figure 4-17, la Figure 4-18, la Figure 4-19, la Figure 4-20, la Figure 4-21, la Figure 4-22 et la Figure 4-23 correspondent respectivement au modèle de Miecret-Gustavsson, de Lee-Liu, de Liu-Rubow, de Payet, de Gougeon, de Stechkina et al. et de Kirsch et al..

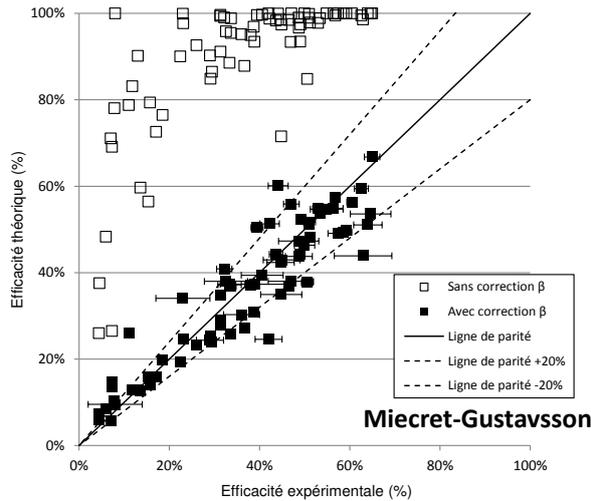


Figure 4-17 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Miecret-Gustavsson ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

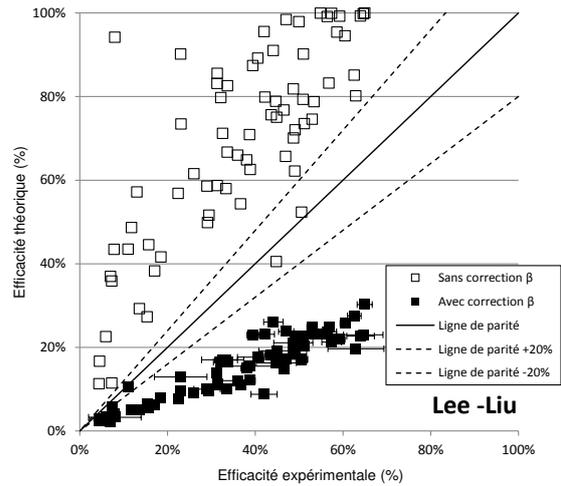


Figure 4-18 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Lee-Liu ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

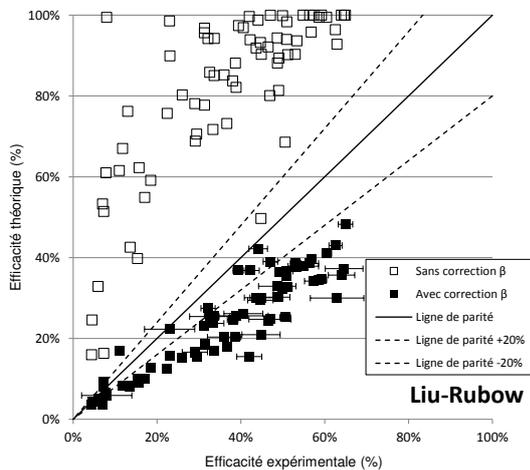


Figure 4-19 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Liu-Rubow ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

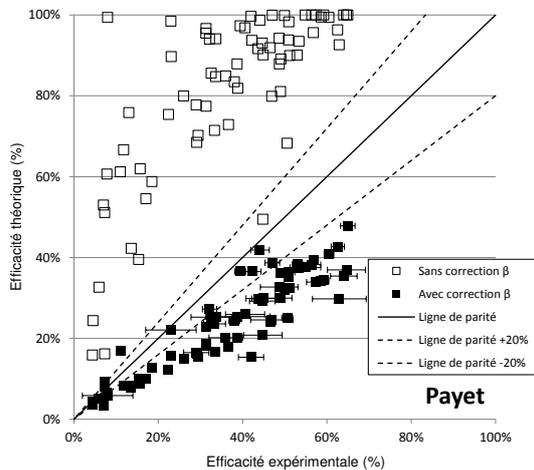


Figure 4-20 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Payet ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

Tout d'abord, les résultats soulignent que l'utilisation du facteur de correction améliore significativement les prédictions pour tous les modèles. En effet, pour le modèle de Miecret-Gustavsson (Figure 4-17) les prédictions pour les efficacités expérimentales comprises entre 40 et 60% sont proches de 100% d'efficacité sans l'utilisation du facteur  $\beta$  alors qu'avec l'utilisation du facteur de correction  $\beta$  la plupart des valeurs du modèle sont à plus ou moins 20% près de la valeur expérimentale.

Ensuite, malgré l'amélioration de la prédiction des modèles avec l'utilisation du facteur  $\beta$ , les modèles peuvent être divisés en deux groupes. Le premier groupe est composé des modèles qui prédisent des valeurs proches de la ligne de parité à plus ou moins 20% à savoir le modèle de Miecret-Gustavsson, Stechkina et al. et Kirsch et al..

Le deuxième groupe est composé des modèles qui sous-évaluent l'efficacité expérimentale. On retrouve ainsi le modèle de Lee-Liu, de Liu-Rubow, de Payet et de Gougeon. On remarque que les modèles de Lee-Liu et de Gougeon sous-évaluent l'efficacité expérimentale, mais possèdent une corrélation importante entre les valeurs de simulations et expérimentales.

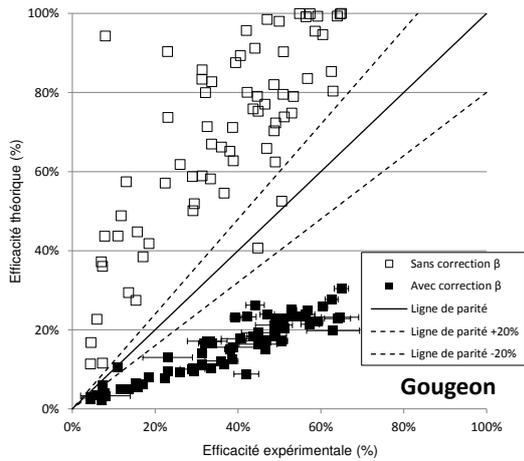


Figure 4-21 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Gougeon ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

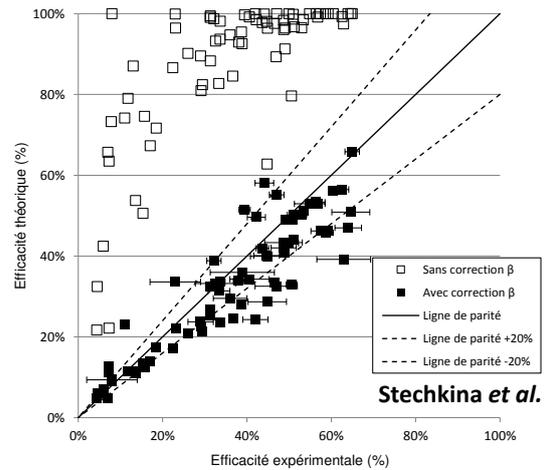


Figure 4-22 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Stechkina et al. ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

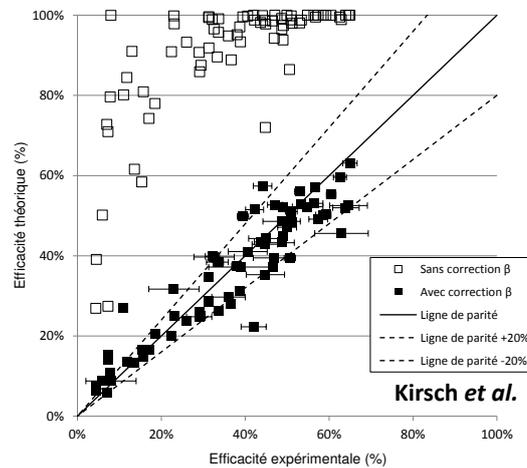


Figure 4-23 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Kirsch et al. ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

Les erreurs relatives moyennes pour chacun des modèles sont regroupées dans le Tableau 4-7. Les modèles les plus prédictifs sont donc les modèles de Mieciet-Gustavsson, de Kirsch et al. et de Stechkina et al. avec une erreur relative moyenne respective de 18,6% et 18,7% et 19,6%.

Tableau 4-7 - Erreurs relatives des moyennes entre l'efficacité théorique et expérimentale pour les structures meltblown avec le modèle de perméabilité de Davies

	Mieciet-Gustavsson	Lee-Liu	Liu-Rubow	Payet	Gougeon	Stechkina et al.	Kirsch et al.
<b>Erreur Relative moyenne</b>	18,6%	56,8%	33,7%	34,1%	56,5%	19,6%	18,7%

En conclusion, l'utilisation du facteur  $\beta$  pour corriger l'efficacité à partir de mesure expérimentale de perte de charge permet d'améliorer la prédiction de l'efficacité des 71 structures meltblown testées.

### 4.2.2.3.2 Application du facteur $\beta$ aux structures spunbond îles-en-mer fracturées par hydroliage

Dans cette partie, nous avons appliqué la correction du facteur  $\beta$  aux médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés dont les caractéristiques et les valeurs d'efficacités théoriques et expérimentales sont regroupées dans l'annexe B.

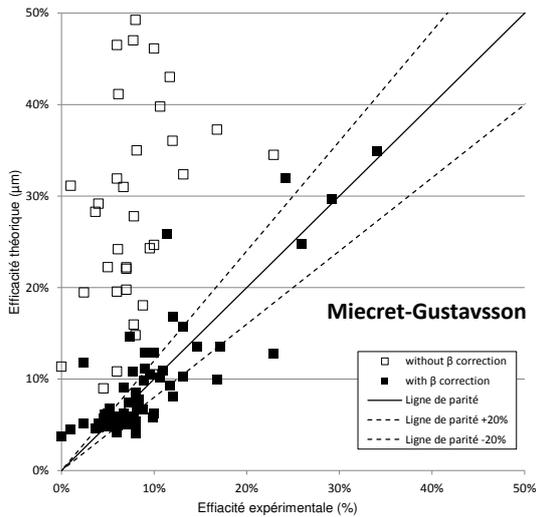


Figure 4-24 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Miecret-Gustavsson ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

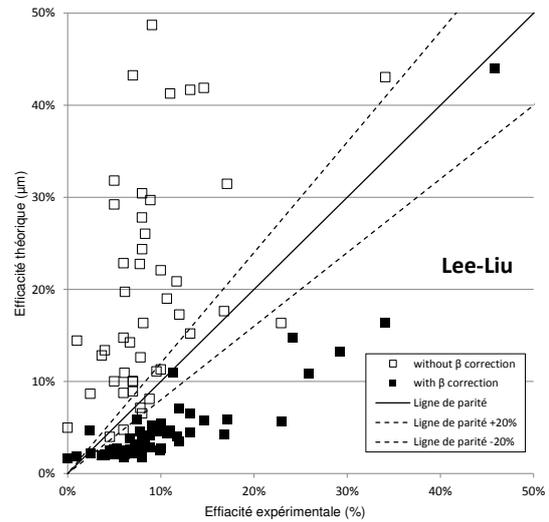


Figure 4-25 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Lee-Liu ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

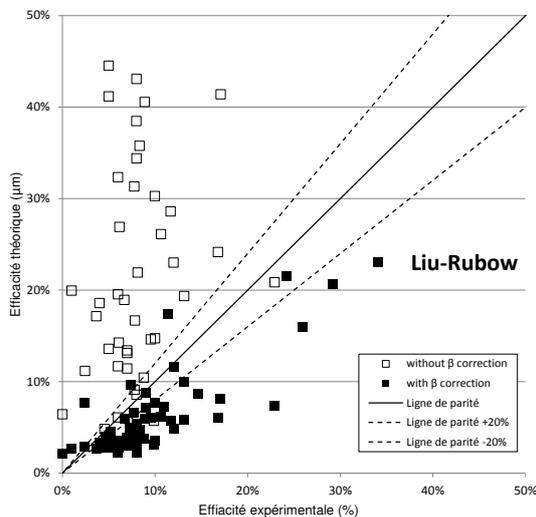


Figure 4-26 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Liu-Rubow ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

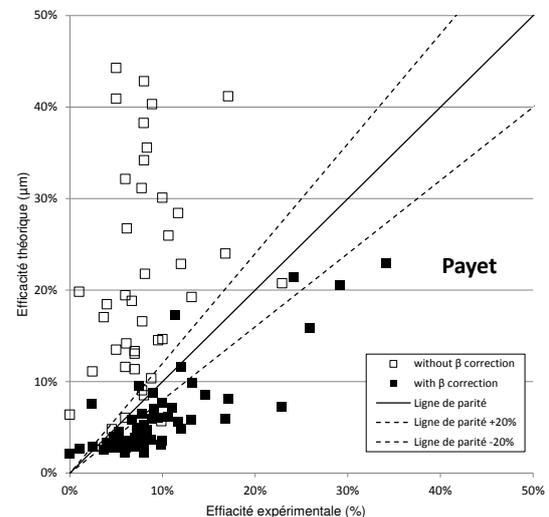


Figure 4-27 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Payet ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

Pour chaque modèle, nous avons représenté l'efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale avec et sans correction du facteur  $\beta$  ainsi la Figure 4-24, la Figure 4-25, la Figure 4-26, la Figure 4-27, la Figure 4-28, la Figure 4-29 et la Figure 4-30 correspondent

respectivement au modèle de Miecret-Gustavsson, de Lee-Liu, de Liu-Rubow, de Payet, de Gougeon, de Stechkina et al. et de Kirsch et al..

L'examen de ces figures met en évidence que l'utilisation du facteur  $\beta$  permet d'améliorer la prédiction de l'efficacité calculée par chacun des modèles. Par exemple, pour le modèle de Miecret-Gustavsson (Figure 4-24), les efficacités théoriques sans prise en compte de l'hétérogénéité se distribuent entre 10 et 50% alors que les efficacités théoriques avec prise en compte de l'hétérogénéité varient entre 5 et 20% pour une efficacité expérimentale s'étalant de 0 et 20%.

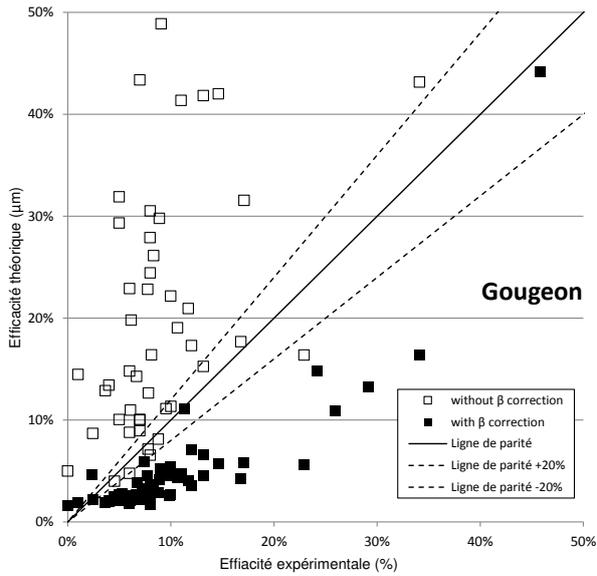


Figure 4-28 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Gougeon ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

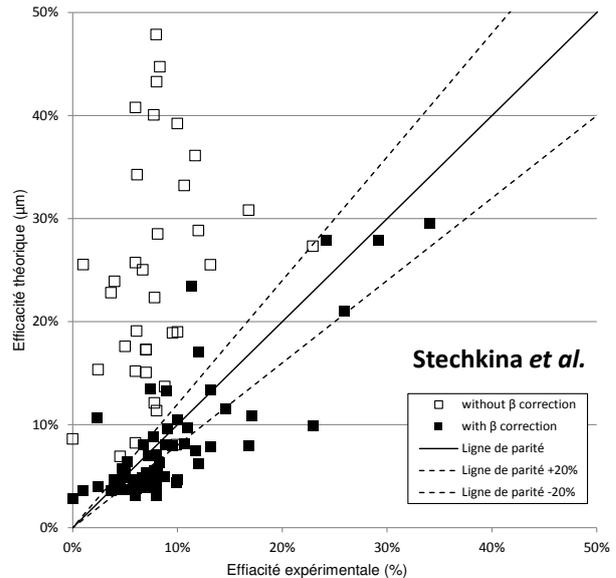


Figure 4-29 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Stechnina et al. ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

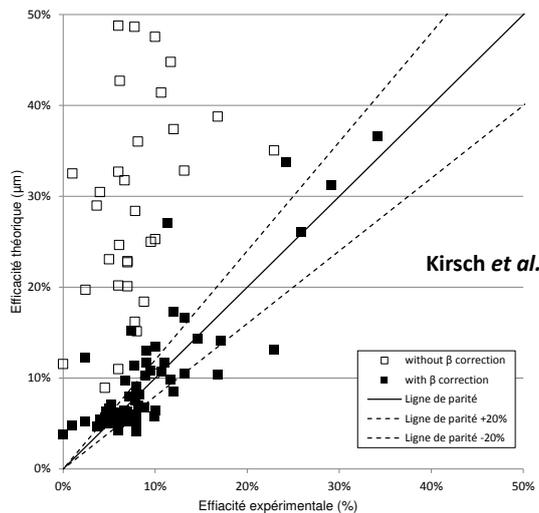


Figure 4-30 - Efficacité théorique en fonction de l'efficacité expérimentale pour le modèle de Kirsch et al. ( $V_f=5\text{cm/s}$ ,  $d_p=0,3\ \mu\text{m}$ )

De même que pour les médias « nano » meltblown, les modèles peuvent être divisés en deux groupes. Le premier groupe est composé des modèles qui prédisent des valeurs proches de la ligne de parité à plus ou moins 20% à savoir le modèle de Miecret-Gustavsson, Stechkina et al. et Kirsch et al.. Le deuxième groupe est composé des modèles qui sous-évaluent l'efficacité expérimentale. On retrouve ainsi le modèle de Lee-Liu, de Liu-Rubow, de Payet et de Gougeon. Le calcul des erreurs relatives moyennes montre que le modèle le plus performant est celui de Miecret-Gustavsson avec une erreur relative de 37,8% (Tableau 4-8). Ainsi l'application du facteur de correction  $\beta$ , bien qu'améliorant les prédictions, n'est pas aussi intéressante comparativement aux structures meltblown.

Tableau 4-8 – Erreurs relatives des moyennes entre l'efficacité théorique et expérimentale pour les structures spunbond îles-en-mer fracturées par hydroliage

	Miecret-Gustavsson	Lee-Liu	Liu-Rubow	Payet	Gougeon	Stechkina et al.	Kirsch et al.
<b>Erreur Relative moyenne</b>	37,8%	55,4%	44,0%	44,3%	55,3%	39,4%	39,8%

L'explication concernant cet écart pour les structures îles-en-mer avec hydrofracturation peut être imputée au choix du diamètre des filaments. En effet, le diamètre déterminé par la surface spécifique n'est pas un diamètre équivalent représentatif des phénomènes mis en jeu.

En conclusion, la prise en compte de l'hétérogénéité à partir de mesure de perméabilité corrige significativement l'efficacité théorique des modèles de filtration pour les médias « nano » meltblown. Dans le cas des médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés, on observe une amélioration de l'efficacité théorique même si elle reste moins significative qu'avec les médias « nano » meltblown.

### 4.3 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

L'étude des propriétés en filtration des différents médias fabriqués a permis de valider l'intérêt des fibres ultrafines en filtration de l'air avec les médias « nano » meltblown. De plus, l'augmentation du compromis efficacité/perte de charge est notable à partir d'un diamètre moyen de 2  $\mu\text{m}$  et augmente lorsque le diamètre des filaments diminue. Ainsi, selon les applications, il n'est pas nécessaire d'obtenir des fibres submicroniques pour profiter de l'effet de glissement.

Par ailleurs, en retraitant nos données, certaines structures atteignent théoriquement les propriétés requises pour satisfaire à la norme FFP1 et FFP2 ce qui souligne le potentiel de ces structures.

La modélisation de l'efficacité et de la perméabilité a montré que considérer une structure uniforme en épaisseur, en compacité, masse surfacique et une distribution de diamètre monodisperse ne permet pas de prédire correctement les propriétés de filtration. En effet, les procédés de fabrication des structures fibreuses tels que le procédé meltblown et l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer impliquent une certaine hétérogénéité. Pour résoudre ce problème, l'utilisation du facteur de correction développé par Yeh et Liu et Kirsch et al. permet de corriger les modèles d'efficacité à partir de mesures expérimentales de perméabilité.

Cette correction permet d'améliorer la prédiction mais nécessite des mesures de perméabilités au préalable.

Afin de simuler plus précisément les propriétés de structures fibreuses en termes d'efficacité, il sera nécessaire de caractériser plus finement la non-homogénéité des structures fibreuses. Pour cela, un travail sur la mesure de l'hétérogénéité doit être entrepris dans le but de relier des observations d'hétérogénéité au facteur de correction  $\beta$  ou un modèle prenant en compte l'hétérogénéité. Cela est d'autant plus complexe que les hétérogénéités sont variées : épaisseur, compacité, masse surfacique et distribution des diamètres des fibres. Dans la littérature, des approches proposent de prendre en compte une distribution de compacité (Shapiro 1996; Dhaniyala & Liu 2001) cependant, le point critique de ce type de méthode est d'identifier la variation de compacité dans un média fibreux réel. Une piste intéressante serait de caractériser cette hétérogénéité à l'aide d'un scanner et d'une analyse d'image pour mesurer la répartition de matière et en déduire une distribution de masse surfacique. En parallèle, nous mesurerions la variation locale d'épaisseur à l'aide d'un profilomètre mécanique. Le couplage de ces deux méthodes permettrait d'obtenir la variation locale de la compacité de manière précise.

## CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

Ce travail s'inscrit dans le cadre du projet FILAIRCO où l'objectif est axé sur l'étude et le développement de médias fibreux avec des fibres ultrafines pour la filtration de l'air à travers deux technologies : le procédé « nano » meltblown et le procédé spunbond bicomposant îles-en-mer avec hydrofracturation des fibres.

Pour cela, nous avons décrit, dans un premier temps, un bref état de l'art des médias fibreux à fibres ultrafines destinés à la filtration de l'air et détaillé les différentes méthodes pour concevoir ces médias. Pour cela, nous avons exposé les principales caractéristiques et applications des médias fibreux ainsi que la théorie détaillant les phénomènes physiques de filtration de l'air. Ensuite, à l'aide de modèle de filtration, nous avons montré l'intérêt théorique d'utiliser des fibres ultrafines pour améliorer les performances de filtration des médias fibreux. En effet, l'effet de glissement lié aux fibres ultrafines augmente l'efficacité pour une même perte de charge, toute chose égale par ailleurs. Parmi les méthodes de fabrication de médias à fibres ultrafines, on retrouve l'électrospinning qui permet d'obtenir des fibres inférieures à 300 nm, mais qui possède plusieurs désavantages comme une faible adhésion avec le support ou une productivité relativement faible. Au contraire, malgré le fait que le procédé « nano » meltblown et l'hydrofracturation de média spunbond îles-en-mer ne permettent pas d'avoir des filaments aussi fins et de manière aussi homogène qu'avec l'électrospinning, ces deux technologies possèdent un fort potentiel industriel. En effet, les fondements des infrastructures nécessaires à ces deux méthodes sont déjà présents dans l'industrie des nontissés. De plus, ces deux technologies possèdent une productivité plus importante que le procédé d'électrospinning et peuvent être insérées en combinaison avec d'autres procédés.

Dans un second temps, nous nous sommes concentrés sur l'étude et le développement de médias à fibres ultrafines à partir du procédé « nano » meltblown. Après avoir présenté les différentes étapes du procédé meltblown et expliqué les différences entre une filière « nano » et une filière « classique » meltblown, nous avons réalisé plusieurs campagnes d'essais. Le but était de déterminer les meilleures stratégies pour obtenir les filaments les plus fins tout en limitant l'hétérogénéité. Pour cela, nous avons étudié l'influence du débit de polymère, du débit d'air primaire, de la DCD, de la température de filage et de la viscosité à l'état fondu sur le diamètre moyen des filaments, la distribution des diamètres de filaments ainsi que la compacité. Les résultats montrent que la stratégie optimale pour obtenir les filaments les plus fins consiste à réduire au maximum le débit de polymères. Dans ces conditions, nous avons obtenu des filaments submicroniques avec un diamètre médian de 0,66  $\mu\text{m}$ . Ensuite, l'étude de la viscosité à l'état fondu montre qu'utiliser un polymère plus fluide permet de réduire le diamètre des filaments. Cependant lorsque le débit d'air primaire est trop fort, les filaments les plus fins se rompent et sont éjectés de la structure (phénomène de « fly ») dans le cas où le polymère est le plus fluide. Ainsi, les filaments les plus fins sont obtenus pour une viscosité à l'état fondu intermédiaire (MFI de 1200 g/10min). Puis, lorsque l'on augmente la température de filage, la polydispersion des fibres diminue ce qui constitue un pas supplémentaire pour mieux

comprendre les phénomènes à l'origine de la polydispersion des fibres et d'ainsi chercher à la minimiser.

De plus, l'augmentation de la DCD crée un voile plus ouvert et donc une compacité plus faible tandis que générer des filaments fins augmente la compacité du média, toutes choses égales par ailleurs. Enfin, l'étude de la qualité du voile montre une hétérogénéité de répartition de matière des médias meltblown.

Dans un troisième temps, nous avons étudié et développé des médias spunbond îles-en-mer hydrofracturés en se focalisant sur la qualité d'hydrofracturation et la qualité structurelle du média. Afin d'étudier l'hydrofracturation, nous avons développé une approche pour estimer le taux de fracturation qui se fonde sur la mesure de la surface spécifique. Ensuite, à partir d'observations MEB et de mesures de la masse surfacique, de l'épaisseur, de la compacité et de la perméabilité nous avons évalué la qualité du voile final. À travers nos expériences, nous avons mis en avant le rôle du polymère mer, du ratio îles/mer et de la pression des jets sur la qualité d'hydrofracturation et la qualité finale du voile. Ainsi, augmenter la pression des jets permet naturellement d'augmenter l'hydrofracturation. Cependant, cette augmentation est significative lorsque la fraction massique du polymère mer reste faible (< 50%). De plus, l'utilisation de pression trop importante perforé et déstructure le média. La comparaison de l'hydrofracturation pour différents polymères mer montre qu'un polymère peu résistant au choc ou une faible résistance à la traction favorisent l'hydrofracturation.

Par la suite, dans le but de limiter l'impact des jets d'eau ainsi que la consommation énergétique, nous avons développé une nouvelle approche. Elle consiste à dégrader le polymère mer avant l'étape de fracturation. Pour cela, nous avons développé des médias spunbond îles-en-mer I/S PP/PLA puis dégradé le PLA dans une enceinte climatique. Les résultats sont encourageants et montrent que nous pouvons atteindre une hydrofracturation importante pour une pression de jet d'eau plus faible.

Dans un quatrième chapitre, après avoir décrit le banc de filtration utilisé et les conditions des essais, nous avons validé l'intérêt des médias à fibres ultrafines en analysant les performances de filtration de médias « nano » meltblown. Ensuite, nous avons caractérisé différents médias « nano » meltblown et spunbond îles-en-mer hydrofracturés. Pour comparer les différents types de médias, nous avons recalculé l'efficacité pour une même perte de charge dans le référentiel de la norme EN149 des masques respiratoires. Après ce retraitement, un certain nombre de médias atteignent les spécifications FFP1 et FFP2 ce qui montre le potentiel de ces structures sans charge électrostatique. Nous avons ensuite modélisé les performances de filtration. L'utilisation de modèles « classiques » aussi bien de perméabilité que d'efficacité ne permet pas de prédire les performances de filtration. Une des explications est que les modèles de filtration supposent un média uniforme c'est-à-dire une répartition spatiale uniforme de la matière avec des fibres monodisperses. Cette hypothèse est loin d'être vérifiée sur nos médias fibreux. Ainsi, nous avons proposé une extension des modèles classiques d'efficacité avec l'introduction d'un facteur de correction en utilisant les mesures de perméabilité afin de prendre en compte l'hétérogénéité des structures. Cette correction améliore grandement les prédictions des modèles notamment pour les médias « nano » meltblown.

Les études réalisées ont constitué un travail exploratoire qui ouvre de nombreuses perspectives. Tout d'abord, dans notre volonté de développer des médias à fibres ultrafines, nous avons été limités techniquement aussi bien avec le procédé « nano » meltblown qu'avec l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer.

En effet, pour le procédé « nano » meltblown, le débit de polymères, paramètre essentiel afin de réduire le diamètre des filaments, est restreint par le circuit d'extrusion avec notamment la taille de la cylindrée de la pompe volumétrique. Ainsi, même si nous avons réussi à obtenir des médias avec un diamètre moyen de 0,66  $\mu\text{m}$ , il est possible d'obtenir des filaments plus fins en utilisant un circuit d'extrusion adapté, avec une plus petite cylindrée par exemple.

De même, lors de l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer, les filaments développés ne possédaient que 37 îles. L'idéal serait de pouvoir augmenter le nombre d'îles afin de diminuer le diamètre des îles, mais cela nécessite d'investir dans une filière spunbond spécifique. Nos travaux constituent donc une étape dans une démarche d'obtention de fibres ultrafines.

Ensuite, en plus des limites techniques, nos études ont aussi montré les limites scientifiques. Ainsi, les mécanismes physiques qui ont lieu lors de l'hydrofracturation restent mal connus. Nous avons avancé certaines hypothèses, mais des recherches plus fondamentales sur l'hydrofracturation permettraient de mieux comprendre ces mécanismes. L'objectif étant à terme de pouvoir optimiser les conditions d'hydrofracturation et le choix des polymères.

Puis, afin de pouvoir étudier certains phénomènes, il est important de pouvoir caractériser correctement nos structures. Ainsi, dans le but d'approfondir les liens entre hétérogénéité et propriétés de filtration, le développement de méthodes de caractérisation fine de l'hétérogénéité s'avère nécessaire. L'analyse d'images combinée à la profilométrie d'une structure fibreuse s'avère potentiellement intéressante (Jerbi et al. 2016).

Enfin, durant nos travaux nous avons fait certains choix forts comme l'hydrofracturation, d'autres voies comme la dissolution d'une mer soluble dans l'eau chaude pourraient aussi être une solution afin de produire des fibres fines tout en respectant l'environnement.

De plus, l'aspect modélisation des procédés n'a pas été abordé. Par exemple, de nombreux modèles proposent de décrire les phénomènes mis en jeu lors du procédé meltblown. Encore une fois, ce type d'approche permettrait de mieux comprendre les phénomènes tout en optimisant les paramètres procédés.

# BIBLIOGRAPHIE

- AIRPARIF, 2016. Point sur l'épisode de pollution en cours. Available at: <http://www.airparif.asso.fr/actualite/detail/id/186> [Accessed January 6, 2017].
- AIRPARIF, 2008. *Synthèse des connaissances sur les particules en suspension dans l'air et des travaux d'airparis sur ces polluants*,
- Allen, M.D. & Raabe, O.G., 1982. Re-evaluation of millikan's oil drop data for the motion of small particles in air. *Journal of Aerosol Science*, 13(6), pp.537-547.
- Anantharamaiah, N., Verenich, S. & Pourdeyhimi, B., 2008. Durable Nonwoven Fabrics via Fracturing Bicomponent Islands-in-the-Sea Filaments. *Journal of Engineered Fibers and Fabrics*, 3(3), pp.1-9.
- Arvidson, S.A. et al., 2012. Modification of melt-spun isotactic polypropylene and poly(lactic acid) bicomponent filaments with a premade block copolymer. *Macromolecules*.
- Ayad, E. et al., 2016. Influence of Rheological and Thermal Properties of Polymers During Melt Spinning on Bicomponent Fiber Morphology. *Journal of Materials Engineering and Performance*. Available at: <http://link.springer.com/10.1007/s11665-016-2193-2>.
- Bansal, V. & Shambaugh, R.L., 1998. On-line Determination of Diameter and Temperature during Melt Blowing of Polypropylene. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 37(97), pp.1799-1806. Available at: <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ie9709042>.
- Barhate, R.S. & Ramakrishna, S., 2007. Nanofibrous filtering media: Filtration problems and solutions from tiny materials. *Journal of Membrane Science*, 296(1-2), pp.1-8.
- Bear, J.H. et al., 2007. On-line Measurement of Fiber Motion During Melt Blowing. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 46, pp.7340-7352. Available at: <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ie070588j>.
- Bhat, G.S. & Malkan, S.R., 2006. Chapter 4: Polymer-laid web formation. In *Handbook of Nonwovens*. pp. 143-200.
- Blades, H., Wilington & White, J.R., 1963. Fibrillated strand. , pp.1-14.
- Bo, Z., 2012. Production of polypropylene melt blown nonwoven fabrics: Part I-numerical simulation and prediction of fibre diameter. *Indian Journal of Fibre and Textile Research*, 37(3), pp.280-286.
- Bresee, R. & Ko, W., 2003. Fiber Formation During Melt Blowing. *INJ Summer*.
- Bresee, R. & Qureshi, U., 2006. Influence Of Process Conditions On Melt Blown Web Structure . Part IV - Fiber Diameter. *Journal of Engineered Fabrics & Fibers*, 1(1), pp.32-46.
- Bresee, R.R., Qureshi, U.A. & Pelham, M.C., 2005. Influence of processing conditions on melt blown web structure: Part 2 - Primary airflow rate. *International Nonwovens Journal*, 2, pp.11-18.
- Bresee, R.R. & Qureshi, U. a, 2002. Fiber Motion Near The Collector During Melt Blowing: Part 2 - Fly formation. *International Nonwovens*, pp.21-17.
- Brunnschweiler, D., Swarbrick, G. & Russell, S.J., 2006. Chapter 5: Mechanical bonding. In S. J. Russell, ed. *Handbook of Nonwovens*. Woodhead Publishing, pp. 201-297.
- Buckley, R.L. & Loyalka, S.K., 1989. Cunningham correction factor and accommodation coefficient: Interpretation of Millikan's data. *Journal of Aerosol Science*, 20(3), pp.347-349.
- Carman, P., 1956. *Flow of gases through porous media*. Academic P., New York.
- Chapman, R. ed., 2010. *Handbook of nonwoven for technical textile*, Woodhead Publishing.
- Chen, T., Li, L. & Huang, X., 2005. Fiber diameter of polybutylene terephthalate melt-blown nonwovens. *Journal of Applied Polymer Science*, 97(4), pp.1750-1752. Available at: <http://doi.wiley.com/10.1002/app.21932>.
- Choi, K., Spruiell, J.E. & Fellers, J.F., 1988. Strength Properties of Melt Blown Nonwoven Webs. *Polymer Engineering and Science*, (2), pp.81-89.
- CITEPA, 2014. Inventaire des émissions de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre

- en France - Format SECTEN. , p.333p. Available at: [http://www.citepa.org/images/III-1\\_Rapports\\_Inventaires/secten\\_avril2014\\_sec.pdf](http://www.citepa.org/images/III-1_Rapports_Inventaires/secten_avril2014_sec.pdf).
- Code de l'environnement, 2010. *Article L220-2 du 14 juillet 2010*,
- Commissariat général au développement durable, 2015. Estimation Des Coûts Pour Le Système de Soins Français de Cinq Maladies Respiratoires et Des Hospitalisations Attribuables À La Pollution de L'air.
- Crompton, T.R., 2012. Chapter 1: Mechanical Properties of Polymers. In *Physical Testing of Plastics*. pp. 1–148.
- Cunningham, E., 1910. On the Velocity of Steady Fall of Spherical Particles through Fluid Medium. In *Proceeding of the Royal Society of London*. p. 83:357-365.
- Dahiya, A., Kamath, M.G. & Hegde, R.R., 2004. Meltblown Technology. Available at: <http://www.engr.utk.edu/mse/Textiles/Melt Blown Technology.htm> [Accessed August 25, 2016].
- Darcy, H., 1856. *Les fontaines publiques de la ville de Dijon : exposition et application des principes à suivre et des formules à employer dans les questions de distribution d'eau* Dalmont., France. Available at: <http://scholar.google.com/scholar?hl=en&btnG=Search&q=intitle:Les+fontaines+publique+s+de+la+ville+de+dijon#0>.
- Davies, C.N., 1973. *Air filtration* Academic P., New York.
- Dhaniyala, S. & Liu, B.Y.H., 2001. Theoretical Modeling of Filtration by Nonuniform Fibrous Filters. *Aerosol Science and Technology*, 34(2), pp.170–178. Available at: <http://www.tandfonline.com/doi/pdf/10.1080/027868201300034763>.
- Dooley, J. & Rudolph, L., 2003. Viscous and Elastic Effects in Polymer Coextrusion. *Journal of Plastic Film and Sheeting*, 19(2), pp.111–122.
- Doshi, J. & Reneker, D.H., 1995. Electrospinning process and applications of electrospun fibers. *Journal of Electrostatics*, 35, pp.151–160.
- Drummond, J.E. & Tahir, M.I., 1984. Laminar viscous flow through regular arrays of parallel solid cylinders. *International Journal of Multiphase Flow*, 10(5), pp.515–540.
- Dugan, J.S., 2001. Novel properties of PLA fibers. *international Nonwovens Journal*, 10(3), pp.29–33.
- Durany, A., Anantharamaiah, N. & Pourdeyhimi, B., 2009. High surface area nonwovens via fibrillating spunbonded nonwovens comprising Islands-in-the-Sea bicomponent filaments : structure – process – property relationships. *Journal of Materials Science*, pp.5926–5934.
- Dutton, K., 2008. Overview and analysis of the meltblown process and parameters. *Journal of Textile and Apparel, Technology and Management*, 6(1), p.25. Available at: <http://ojs.cnr.ncsu.edu/index.php/JTATM/article/view/342>.
- EDANA, 2016a. Facts and figures. Available at: <http://www.edana.org/discover-nonwovens/facts-and-figures>.
- EDANA, 2016b. *Glossary nonwovens terms*,
- Ellison, C.J. et al., 2007a. Correction : Melt blown nanofibers: Fiber diameter distributions and onset of fiber breakup. *Polymer*, 48(11), pp.3306–3316.
- Ellison, C.J. et al., 2007b. Melt blown nanofibers: Fiber diameter distributions and onset of fiber breakup. *Polymer*, 48(11), pp.3306–3316. Available at: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0032386107003540>.
- Farrington, D.W. et al., 2006. Poly(lactic acid) fibers. In R. S. Blackburn, ed. *Biodegradable and Sustainable Fibres*. pp. 191–220. Available at: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/B9781855739161500065>.
- Fedorova, N., 2006. *Investigation of the utility of islands-in-the-sea bicomponent fiber technology in the spunbond process*. North Carolina State University.
- Fedorova, N. & Pourdeyhimi, B., 2009. High Strength Nylon Micro- and Nanofiber Based Nonwovens via Spunbonding. *Journal of Applied Physics*, 113(December 2006), pp.1763–1772.

- Forchheimer, P., 1901. *Wasserbewegung durch boden. Z. Vereines Deutscher Ingenieure*, 45:1736–1741 et 1781–1788,
- Friedlander, S.K., 1967. *Biochemical and Biological Engineering*, N. Blankenbrough, Academic.
- Frising, T., 2004. *Etude de la filtration des aérosols liquides et de mélanges d'aérosols liquides et solides*. Université de Lorraine.
- Gervais, P.-C., 2013. *Etude expérimentale et numérique du colmatage de filtres plissés*. Université de Lorraine.
- Gougeon, R., 1994. *Filtration des aérosols liquides par les filtres à fibres en régime d'interception et d'inertie*. Université Paris XII.
- Hammonds, R., Gazzola, W. & Benson, R., 2014. Physical and thermal characterization of polylactic acid meltblown nonwovens. *Journal of Applied Polymer Science*, 131(15), pp.1–7.
- Han, W., Wang, X. & Bhat, G.S., 2013. Molecular Nanotechnology Structure and Air Permeability of Melt Blown Nanofiber Webs. *Journal of Nanomaterials & Molecular Nanotechnology*, pp.1–5.
- Happel, J., 1959. Viscous flow relative to arrays of cylinders. *AIChE Journal*, 5(2), pp.174–177.
- Harold, F.G., Wagner Jr., J.R. & Mount, E.M., 2013. *Extrusion: The Definitive Processing Guide and Handbook* William An.,
- Hassan, M.A. et al., 2013. Fabrication of nanofiber meltblown membranes and their filtration properties. *Journal of Membrane Science*, 427, pp.336–344. Available at: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S037673881200734X>.
- Hassan, M.A.A., 2013. Structure-Property-Process Relationships for meltblown fibrous media.
- Haynes, B.D., 1991. *No Title*. University of Tennessee.
- Hedge, R., Dahiya, A. & Kamath, M.G., 2004. Bicomponent fiber. Available at: [http://www.engr.utk.edu/mse/Textiles/Bicomponent fibers.htm](http://www.engr.utk.edu/mse/Textiles/Bicomponent%20fibers.htm) [Accessed September 1, 2016].
- Henry, F. & Ariman, T., 1983. An evaluation of the kuwabara model. *Particulate Science and Technology*, 1, pp.1–20.
- Hills, 2016. Hills Nano-Technology. Available at: <http://www.hillsinc.net/documents/> [Accessed September 5, 2016].
- Hiokki, K., 1990. Leatherlike materials. *Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology*, 2(4), pp.1–15.
- Huang, Z.M. et al., 2003. A review on polymer nanofibers by electrospinning and their applications in nanocomposites. *Composites Science and Technology*, 63(15), pp.2223–2253.
- Hung, C.H. & Leung, W.W.F., 2011. Filtration of nano-aerosol using nanofiber filter under low Peclet number and transitional flow regime. *Separation and Purification Technology*, 79(1), pp.34–42. Available at: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S1383586611001584>.
- Hutchins, D.K. et al., 1995. Slip Correction Measurements for Solid Spherical Particles by Modulated Dynamic Light Scattering Slip Correction Measurements for Solid Spherical Particles by Modulated Dynamic Light Scattering. *Aerosol Science and Technology*, 22, pp.202–218.
- Hutten, I.M., 2015. *Handbook of nonwoven filter media 2nd edition*,
- Ilias, S. & Douglas, P.L., 1989. Inertial impaction of aerosol particles on cylinders at intermediate and high reynolds numbers. *Chemical Engineering Science*, 44(1), pp.81–99.
- Jackson, G.W. & James, D.F., 1986. The Permeability of Fibrous Porous Media. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 64, pp.365–374.
- Jaroszcyk, T., Fallon, S.L. & Schwartz, S.W., 2008. Development of high dust capacity, high efficiency engine air filter with nanofibers. In *34th International Congress on Powertrain and Transport Means KONES 2008*.
- Jerbi, T., Vroman, P. & Zeng, X., 2016. A multicriteria approach for the characterization of fiber spatial distribution in webs using image analysis. In *12th international FLINS Conference*. Roubaix, France.
- Jun, H.-W., Paramonov, S.E. & Hartgerink, J.D., 2006. Biomimetic self-assembled nanofibers. *Soft*

- Matter*, 2(3), p.177. Available at: <http://xlink.rsc.org/?DOI=b516805h>.
- Kim, J.H. et al., 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), p.31.
- Kim, S.C., Harrington, M.S. & Pui, D.Y.H., 2007. Experimental study of nanoparticles penetration through commercial filter media. *Journal of Nanoparticle Research*, 9(1), pp.117–125.
- Kirsch, A.A. & Fuchs, N.A., 1968. Studies on fibrous aerosol filters - III diffusional deposition of aerosols in fibrous filters. *Ann. Occup. Hyg.*, 11(1), pp.299–304.
- Kirsch, A.A. & Zhulanov, U. V., 1978. Measurement of aerosol penetration through high efficiency filters. *Journal of Aerosol Science*, 9(4), pp.291–298. Available at: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/0021850278900319>.
- Kozeny, J., 1927. *Über kapillare leitung des wassers im boden. Sitzungsberichte der Akademie der Wissenschaften in Wien*, 136:271–306.,
- Krutka, H.M., Shambaugh, R.L. & Papavassiliou, D. V., 2004. Effects of temperature and geometry on the flow field of the melt blowing process. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 43(15), pp.4199–4210.
- 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(4), pp.527–532.
- Lalagiri, M. et al., 2013. Filtration efficiency of submicrometer filters. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 52, pp.16513–16518.
- Lamb, H., 1932. *Hydrodynamics*, 6th ed, Cambridge University Press.
- Landahl, H.D. & Herrmann, R.G., 1949. SAMPLING OF LIQUID AEROSOLS BY WIRES, CYLINDERS, AND SLIDES, AND THE EFFICIENCY OF IMPACTION OF THE DROPLETS. *Journal of Colloid Science*, 4(2), pp.103–136.
- Langmuir, I., 1942. *Report on smokes and filters*,
- Langmuir, I., 1948. The Production of Rain By a Chain Reaction in Cumulus Clouds At Temperatures Above Freezing. *Journal of Meteorology*, 5(5), pp.175–192. Available at: [http://dx.doi.org/10.1175/1520-0469\(1948\)005%3C0175:TGORBA%3E2.0.CO%5Cn2](http://dx.doi.org/10.1175/1520-0469(1948)005%3C0175:TGORBA%3E2.0.CO%5Cn2).
- Lee, K.W. & Liu, B.Y.H., 1982. Theoretical Study of Aerosol Filtration by Fibrous Filters. *Aerosol Science and Technology*, 1(2), pp.147–161.
- Lee, Y. & Wadsworth, L.C., 1990. Structure and Filtration Properties of Melt Blown Polypropylene Webs. *Polymer Engineering and science*, 30(22), pp.1413–1419.
- Lewandowski, Z., Ziabicki, A. & Jarecki, L., 2007. The Nonwovens Formation in the Melt-blown Process. *Fibers & Textiles in Eastern Europe*, 15(5), pp.77–81.
- Li, H., Ke, Y. & Hu, Y., 2006. Polymer nanofibers prepared by template melt extrusion. *Journal of Applied Polymer Science*, 99(3), pp.1018–1023.
- Liu, B.Y.H. & Rubow, K.L., 1990. Efficiency, pressure drop and figure of merit of high efficiency fibrous and membrane filter media. In *Vth World Filtration Congress*. Nice, pp. 112–119.
- Liu, R., 2016. Template synthesis. Available at: <http://research.chem.psu.edu/axsgroup/Ran/research/templatesynthesis.html> [Accessed September 1, 2016].
- Liu, Y., Cheng, B. & Cheng, G., 2009. Development and Filtration Performance of Polylactic Acid Meltblowns. *Textile Research Journal*, 80(9), pp.771–779. Available at: <http://trj.sagepub.com/cgi/doi/10.1177/0040517509348332>.
- Loewenstein, K., 1973. *The Manufacturing Technology of Continuous Glass Fibers* New York,;
- Lozano, K. & Kamalaksha, S., 2009. *Superfine Fiber Creating Spinneret and Uses Thereof*,
- Lozano, K. & Sarkar, K., 2009. Methods and Apparatuses for Making Superfine Fibers. , 1(61).
- Ma, P.X. & Zhang, R., 1999. Synthetic nano-scale fibrous extracellular matrix. *Journal of Biomedical Materials Research*, 46(1), pp.60–72.
- Mao, N., Russell, S.J. & Pourdeyhimi, B., 2006. Chapter 9: characterization, testing and modelling of nonwoven fabrics. In *Handbook of Nonwoven*. pp. 401–514.

- Marla, V.T., Shambaugh, R.L. & Papavassiliou, D. V., 2009. Online measurement of fiber diameter and temperature in the melt-spinning and melt-blowing processes. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 48, pp.8736–8744.
- McCulloch, J., 1999. The history of the development of melt blowing technology. *International Nonwoven Journal*, 8(1), pp.139–149.
- Miecret, G. & Gustavsson, J., 1989. Mathematic expression of HEPA and ULPA filters efficiency experimental verification - Pratical alliance to new efficiency test methods. In *Contaminexpert*.
- Milligan, M.W., Buntin, R.R. & Wadsworth, L.C., 1992. The Use of Crossflow to Improve Nonwoven Melt-Blown Fibers. *Journal of Applied Polymer Science*, 44, pp.279–288.
- Millikan, R.A., 1923. Coefficient of slip in gases and the law of reflection of molecules from the surfaces of solids and liquids. *Physical Review*, 21(3), pp.217–238.
- Mortelecque, 2016. Manche filtrante. Available at: <http://www.mortelecque.com/poche-manche-filtrante-depoussierage.html#> [Accessed October 6, 2016].
- Natanson, G.L., 1987. *Filtration: principles and practices*, Marcel Dekker.
- Nayak, R. et al., 2013. Fabrication and characterisation of polypropylene nanofibres by meltblowing process using different fluids. *Journal of Materials Science*, 48(1), pp.273–281. Available at: <http://link.springer.com/10.1007/s10853-012-6742-2>.
- Nayak, R. et al., 2012. Recent advances in nanofibre fabrication techniques. *Textile Research Journal*, 82, pp.129–147.
- Ndaro, M.S. et al., 2007. Splitting of islands-in-the-sea fibers ( PA6/COPET ) during hydroentangling of nonwovens. *Journal of Engineered Fibers and Fabrics*, 2(4), pp.1–9.
- Payen, J. et al., 2009. Médias fibreux nontissés : techniques de fabrication, caractérisation et performances. *SallesPropres*, 60, pp.65–72.
- Payet, S., 1991. *Filtration stationnaire et dynamique des aérosols liquides submicroniques*. Université de Paris XII.
- Pich, J., 1966. *Aerosol Science*, Academic Press.
- Pich, J., 1971. Pressure characteristics of fibrous aerosol filters. *Journal of Colloid and Interface Science*, 37(4), pp.912–917. Available at: <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/0021979771903729>.
- Podgórski, A., Bałazy, A. & Gradoń, L., 2006. Application of nanofibers to improve the filtration efficiency of the most penetrating aerosol particles in fibrous filters. *Chemical Engineering Science*, 61, pp.6804–6815.
- Pourdeyhimi, B. & Fedorova, N. V., 2013. High strength, durable micro and nano-fiber fabrics bicomponent islands in the sea - US Patent 8,420,556. , 2(12).
- Prigneaux, J., 2012. Challenges & Opportunities for Nonwovens Global & Regional Market Trends. In *ITFM Annual conference*.
- Pritchard, M., Sarsby, R.W. & Anand, S.C., 2000. *Handbook of Technical Textiles*, Available at: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9781855733855500202>.
- Rader, D.J., 1990. MOMENTUM SLIP CORRECTION FACTOR FOR SMALL PARTICLES IN NINE COMMON GASES. *Journal of Aerosol Science*, 21(2), pp.161–168.
- Raghavan, B., Soto, H. & Lozano, K., 2013. Fabrication of Melt Spun Polypropylene Nanofibers by Forcespinning. *Journal of Engineered Fibers and Fabrics*, 8(1), pp.52–60.
- Rao, N. & Faghri, M., 1988. Computer Modeling of Aerosol Filtration by Fibrous Filters. *Aerosol Science and Technology*, 8(2), pp.133–156.
- Rouquerol, F. & Luciani, L., 2003. Texture des matériaux pulvérulents ou poreux. *Techniques de l'Ingénieur*, P1050(0), pp.1–24.
- Sakano, T. et al., 2000. Particle collection of medium performance air filters consisting of binary fibers under dust loaded conditions. *Separation and Purification Technology*, 19(1–2), pp.145–152.
- Sarkar, K. et al., 2010. Electrospinning to Forcespinning???. *Materials Today*, 13(11), pp.12–14.
- Science et avenir, 2017. La Chine entame 2017 sous une chape de pollution. Available at:

- [http://www.sciencesetavenir.fr/nature-environnement/pollution/la-chine-entame-2017-sous-une-chape-de-pollution\\_109403](http://www.sciencesetavenir.fr/nature-environnement/pollution/la-chine-entame-2017-sous-une-chape-de-pollution_109403) [Accessed January 6, 2017].
- Shapiro, M., 1996. An analytical model for aerosol filtration nonuniform filter media. *Journal of Aerosol Science*, 27(2), pp.263–280.
- Singha, K. et al., 2012. Effects of Fiber Diameter Distribution of Nonwoven Fabrics on its Properties. *International Journal of Textile Science*, 1(1), pp.7–14.
- Skomra, E.K., 2011. Production and characterization of novel air filtration media.
- Song, H., 2002. *Fiber Splitting of Bicomponent Melt Blown Microfiber Nonwovens by Chemical and Water Treatment*. University of Tennessee.
- Stechkina, I.B. & Fuchs, N.A., 1966. Studies of fibrous aerosol filters - I. Calculation of diffusional deposition of aerosols in fibrous filters. *Ann. Occup. Hyg.*, 9, pp.59–64.
- Stechkina, I.B., Kirsch, A.A. & Fuchs, N.A., 1969. Studies on Fibrous Aerosol Filters – IV. Calculation of Aerosol Deposition ion Model Filters in the Range of Maximum Penetration. *Annals of Occupational Hygiene*, 12(3), pp.1–8.
- Suneja, S.K. & Lee, C.H., 1974. Aerosol filtration by fibrous filters at intermediate Reynolds numbers (< 100). *Atmospheric Environment* (1967), 8(11), pp.1081–1094.
- Suvari, F. et al., 2013. Acoustical absorptive properties of spunbonded nonwovens made from islands-in-the-sea bicomponent filaments. *Journal of the Textile Institute*, 104(4), pp.438–445.
- Tan, D.H. et al., 2010. Meltblown fibers: Influence of viscosity and elasticity on diameter distribution. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 165(15–16), pp.892–900. Available at: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0377025710001345>.
- Tarleton, S. & Wakeman, R., 2008. *Dictionary of Filtration and Separation*, The Nonwoven Institute, 2010. *Nonwovens : Tutorial*,
- Thomas, D., 2001. Etude de la filtration des aérosols par des filtres à fibres.
- U.S. Department of Health and Human Services, 2004. *Toxicological Profile for Synthetic Vitreous Fibers*,
- Wang, J., Kim, S.C. & Pui, D.Y.H., 2008. Investigation of the figure of merit for filters with a single nanofiber layer on a substrate. *Journal of Aerosol Science*, 39(4), pp.323–334.
- Wang, X., Yao, J. & Pan, X., 2009. Fiber Splitting of Bicomponent Meltblown Nonwovens by Ultrasonic Wave. *International Journal of Chemistry*, 1(2), pp.26–33.
- White, C., 2006. Chapter 3: Wet-laid web formation. In *Handbook of Nonwoven*. pp. 112–142.
- Wikipedia, 2016. Air filter for automobile. Available at: [https://en.wikipedia.org/wiki/Air\\_filter#/media/File:Air\\_filter,\\_opel\\_astra\(2\).JPG](https://en.wikipedia.org/wiki/Air_filter#/media/File:Air_filter,_opel_astra(2).JPG) [Accessed October 6, 2016].
- Wikipedia, 2005. Smog. Available at: [https://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/0/02/Smog\\_over\\_Almaty.jpg](https://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/0/02/Smog_over_Almaty.jpg).
- Wilson, A., 2006. Chapter 1: Development of the nonwoven industry. In *Handbook of Nonwoven*. pp. 1–14.
- World Health Organisation, 2006. *Air Quality Guidelines*, Available at: [http://www.euro.who.int/\\_data/assets/pdf\\_file/0016/123064/AQG2ndEd\\_5\\_10PCBs.PDF](http://www.euro.who.int/_data/assets/pdf_file/0016/123064/AQG2ndEd_5_10PCBs.PDF).
- Wyart, D., 2014. Les polymères biodégradables polylactides (PLA) et polyvinyliques alcools (PVA): transformation, façonnage, recyclage PLA et PVA: transformation, façonnage, recyclage. *Technique de l'ingénieur*, 33(0), p.1311.
- Yeh, H.-C. & Liu, B.Y.H., 1974. Aerosol Filtration By Fibrous Filters-II. Experimental. *Aerosol Science*, 5, pp.205–217.
- Yeh, H.-C. & Liu, B.Y.H., 1974. Aerosol filtration by fibrous filters—I.Theoretical. *Aerosol Science*, 5(2), pp.205–217.
- Yeom, B.-Y. & Pourdeyhimi, B., 2011. Aerosol filtration properties of PA6 / PE islands-in-the-sea bicomponent spunbond web fibrillated by high-pressure water jets. *Journal of Materials Science*, pp.5761–5767.

- Yeom, B.Y. & Pourdeyhimi, B., 2011. Web fabrication and characterization of unique winged shaped, area-enhanced fibers via a bicomponent spunbond process. *Journal of Materials Science*, 46(10), pp.3252–3257.
- Zhang, D., Sun, C. (Qin) & Song, H., 2004. An investigation of fiber splitting of bicomponent meltblown/microfiber nonwovens by water treatment. *Journal of Applied Polymer Science*, 94(3), pp.1218–1226.
- Zhao, R. (Rongguo) et al., 2002. Polymer distribution during bicomponent melt blowing of poly(propylene)/poly(ethylene terephthalate) and its improvement. *Journal of Applied Polymer Science*, 85(14), pp.2885–2889. Available at: <http://doi.wiley.com/10.1002/app.10908>.

# ANNEXE A : MODELISATION DE LA PERMEABILITE

Tableau A.1 – Caractéristiques des échantillons meltblown pour la modélisation de la perméabilité

Réf	Caractéristiques du média							Perméabilité			
	Diamètre moyen des filaments ( $\mu\text{m}$ )	Médiane des filaments ( $\mu\text{m}$ )	Ecart-type ( $\mu\text{m}$ )	Espace interquartile ( $\mu\text{m}$ )	Masse surfacique ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	Epaisseur (mm)	Compacité (%)	Perméabilité expérimentale ( $\text{m}^2$ )	Perméabilité de Davies ( $\text{m}^2$ )	Perméabilité de Jackson et James ( $\text{m}^2$ )	Perméabilité de Sakano et al. ( $\text{m}^2$ )
1	1,5	1,4	0,31	0,27	11	0,11	10%	5,9E-12	1,0E-12	4,4E-12	8,1E-12
2	1,3	1,3	0,40	0,34	11	0,12	10%	4,2E-12	7,5E-13	3,3E-12	6,0E-12
3	1,0	0,9	0,40	0,36	12	0,16	8%	6,0E-12	7,0E-13	3,1E-12	5,2E-12
4	1,0	1,0	0,35	0,36	13	0,27	5%	8,3E-12	1,5E-12	6,5E-12	1,2E-11
5	1,1	1,0	0,39	0,26	12	0,19	7%	5,0E-12	1,0E-12	4,6E-12	8,4E-12
6	1,0	0,9	0,31	0,26	12	0,15	8%	4,3E-12	6,9E-13	3,1E-12	5,7E-12
7	1,1	1,1	0,22	0,27	12	0,22	6%	9,1E-12	1,5E-12	6,5E-12	6,6E-12
8	1,0	0,9	0,34	0,31	12	0,17	7%	4,3E-12	7,7E-13	3,4E-12	6,1E-12
9	0,9	0,8	0,32	0,36	12	0,31	4%	8,2E-12	1,3E-12	6,0E-12	1,1E-11
10	2,3	2,2	0,58	0,81	12	0,11	11%	1,8E-11	1,9E-12	8,3E-12	1,4E-11
11	0,8	0,7	0,25	0,20	11	0,12	9%	1,1E-11	3,2E-13	1,4E-12	2,6E-12
12	1,0	1,0	0,28	0,24	11	0,15	8%	5,2E-12	7,7E-13	3,4E-12	6,3E-12
13	0,9	0,8	0,22	0,31	19	0,21	9%	5,7E-12	3,9E-13	1,7E-12	3,2E-12
14	1,3	1,2	0,46	0,36	28	0,24	12%	4,9E-12	5,2E-13	2,3E-12	4,1E-12
15	0,9	0,8	0,36	0,35	11	0,12	9%	6,2E-12	3,9E-13	1,7E-12	3,0E-12
16	1,2	1,1	0,36	0,45	10	0,10	11%	4,9E-12	6,1E-13	2,7E-12	5,0E-12
17	1,2	1,2	0,34	0,35	11	0,15	8%	5,7E-12	1,0E-12	4,4E-12	7,7E-12
18	1,2	1,2	0,36	0,39	12	0,13	9%	4,2E-12	7,3E-13	3,2E-12	6,3E-12
19	1,4	1,3	0,45	0,36	11	0,11	11%	4,8E-12	8,1E-13	3,6E-12	6,4E-12
20	1,2	1,2	0,23	0,23	11	0,12	10%	5,9E-12	6,8E-13	3,0E-12	5,4E-12
21	0,8	0,7	0,27	0,41	11	0,15	7%	3,8E-12	4,9E-13	2,2E-12	4,2E-12
22	1,3	1,4	0,34	0,28	12	0,21	6%	9,2E-12	2,0E-12	8,9E-12	1,4E-11
23	2,5	2,2	1,50	2,02	16	0,19	9%	2,5E-11	3,9E-12	1,7E-11	3,3E-11
24	1,3	1,0	0,96	0,70	16	0,15	11%	6,5E-12	6,9E-13	3,0E-12	9,7E-12
25	6,9	6,3	2,53	3,63	14	0,27	5%	1,5E-10	5,9E-11	2,6E-10	5,5E-10
26	1,4	1,3	0,65	0,79	14	0,19	8%	2,7E-11	1,4E-12	6,4E-12	1,8E-11
27	1,4	1,2	0,94	0,80	12	0,18	7%	4,3E-11	1,6E-12	7,2E-12	1,7E-11
28	2,6	2,3	1,33	1,98	17	0,20	9%	1,6E-11	4,0E-12	1,8E-11	4,3E-11
29	7,5	7,5	2,84	3,87	11	0,24	5%	3,6E-10	8,1E-11	3,6E-10	7,4E-10
30	2,5	2,0	1,39	1,77	12	0,18	7%	5,5E-11	5,0E-12	2,2E-11	3,7E-11
31	3,8	3,5	1,55	1,81	17	0,29	6%	8,6E-11	1,5E-11	6,8E-11	1,2E-10
32	0,7	0,6	0,35	0,34	13	0,20	7%	2,2E-11	3,8E-13	1,7E-12	3,1E-12
33	7,6	6,8	4,09	4,58	14	0,34	4%	5,2E-10	1,1E-10	4,7E-10	9,4E-10
34	1,7	1,5	0,92	0,82	14	0,23	6%	5,8E-11	2,8E-12	1,3E-11	2,2E-11
35	3,6	3,6	1,18	1,46	13	0,17	8%	4,2E-11	9,4E-12	4,2E-11	8,1E-11
36	1,7	1,5	0,81	0,61	16	0,13	13%	6,6E-12	8,2E-13	3,5E-12	9,4E-12
37	7,3	7,3	1,54	2,40	13	0,23	6%	1,9E-10	6,3E-11	2,8E-10	3,5E-10
38	0,9	0,8	0,27	0,42	14	0,15	10%	3,2E-11	3,9E-13	1,7E-12	2,9E-12
39	5,9	5,6	1,34	1,52	15	0,22	7%	7,8E-11	2,8E-11	1,2E-10	1,9E-10
40	1,9	1,7	0,68	0,94	15	0,22	7%	2,1E-11	3,0E-12	1,3E-11	2,7E-11
41	9,7	9,8	2,25	3,16	14	0,27	5%	3,8E-10	1,3E-10	5,7E-10	1,2E-09
42	3,0	2,8	0,99	1,45	13	0,18	7%	3,7E-11	6,7E-12	3,0E-11	6,1E-11
43	2,1	1,7	1,35	2,40	14	0,25	6%	9,0E-11	5,0E-12	2,3E-11	5,0E-11
44	1,3	1,3	0,37	0,29	16	0,25	7%	3,0E-11	1,6E-12	7,2E-12	1,1E-11
45	8,4	8,7	3,52	4,24	13	0,29	5%	3,8E-10	1,1E-10	5,1E-10	9,4E-10
46	1,8	1,7	0,80	0,75	14	0,23	6%	8,0E-11	3,5E-12	1,6E-11	3,1E-11
47	1,3	1,2	0,50	0,58	13	0,14	10%	8,5E-12	8,5E-13	3,7E-12	9,9E-12
48	1,0	0,8	0,46	0,50	15	0,18	9%	9,3E-12	5,5E-13	2,4E-12	6,4E-12
49	1,4	1,3	0,57	0,67	13	0,16	8%	2,1E-11	1,3E-12	5,6E-12	1,5E-11
50	1,0	0,7	0,71	0,59	15	0,22	7%	1,8E-11	7,6E-13	3,4E-12	7,4E-12
51	1,3	1,1	0,47	0,44	13	0,19	7%	2,4E-11	1,3E-12	5,7E-12	1,4E-11
52	1,5	1,5	0,55	0,56	14	0,09	16%	3,8E-12	5,0E-13	2,1E-12	6,1E-12
53	0,8	0,7	0,39	0,45	17	0,21	9%	8,8E-12	3,6E-13	1,6E-12	5,4E-12
54	1,4	1,4	0,50	0,57	13	0,17	8%	1,7E-11	1,4E-12	6,2E-12	1,4E-11
55	0,9	0,7	0,54	0,39	18	0,23	8%	1,3E-11	5,0E-13	2,2E-12	6,3E-12
56	1,2	1,1	0,69	0,76	15	0,21	8%	2,7E-11	1,0E-12	4,4E-12	9,9E-12
57	5,0	4,8	1,01	1,02	20	0,25	8%	4,5E-11	1,6E-11	7,0E-11	1,2E-10
58	4,1	4,0	0,80	0,84	18	0,20	9%	2,1E-11	8,7E-12	3,9E-11	6,8E-11
59	1,6	1,5	0,83	1,25	16	0,14	12%	8,8E-12	9,3E-13	4,1E-12	1,1E-11
60	4,8	5,1	0,81	0,98	18	0,37	5%	9,0E-11	3,3E-11	1,5E-10	2,3E-10
61	2,2	2,3	0,81	0,98	18	0,31	6%	4,7E-11	5,5E-12	2,5E-11	5,0E-11
62	2,5	2,5	0,85	1,02	18	0,27	7%	2,6E-11	5,4E-12	2,4E-11	5,4E-11
63	2,8	2,9	0,57	0,70	16	0,23	7%	2,2E-11	6,2E-12	2,8E-11	5,6E-11
64	1,7	1,7	0,69	0,96	19	0,26	7%	1,5E-11	2,3E-12	1,0E-11	2,3E-11

## Annexe A : Modélisation de la perméabilité

65	1,1	1,0	0,50	0,61	18	0,20	9%	6,9E-12	6,7E-13	3,0E-12	7,6E-12
66	1,3	1,1	0,73	0,80	19	0,37	5%	3,5E-11	2,3E-12	1,0E-11	2,6E-11
67	1,0	0,7	0,89	0,52	20	0,39	5%	2,4E-11	1,4E-12	6,4E-12	1,6E-11
68	2,8	2,9	0,80	0,82	20	0,21	9%	2,1E-11	4,2E-12	1,9E-11	3,7E-11
69	2,7	2,8	0,98	1,09	20	0,19	11%	1,1E-11	3,1E-12	1,3E-11	2,7E-11
70	0,8	0,7	0,45	0,43	20	0,18	11%	7,4E-12	2,3E-13	9,9E-13	3,2E-12
71	3,3	3,4	0,79	0,84	20	0,33	6%	4,1E-11	1,1E-11	4,9E-11	8,7E-11
72	2,0	2,1	0,89	1,09	21	0,32	7%	2,9E-11	3,6E-12	1,6E-11	3,6E-11
73	1,0	0,8	0,51	0,68	21	0,40	5%	2,8E-11	1,1E-12	5,1E-12	1,6E-11
74	1,8	1,7	0,69	0,66	12	0,12	10%	9,2E-12	1,5E-12	6,4E-12	1,5E-11
75	1,6	1,5	0,56	0,43	38	0,51	8%	1,2E-11	1,8E-12	7,9E-12	1,9E-11
76	3,9	3,7	1,35	1,46	9	0,10	9%	2,0E-11	8,3E-12	3,7E-11	7,4E-11
77	3,2	2,9	1,00	1,18	27	0,21	13%	8,4E-12	2,9E-12	1,3E-11	2,7E-11
78	1,4	1,3	0,59	0,69	12	0,13	9%	7,5E-12	1,0E-12	4,4E-12	1,1E-11
79	2,2	2,2	0,58	0,95	9	0,09	10%	1,9E-12	2,2E-12	9,8E-12	2,1E-11
80	9,0	9,0	1,96	2,13	9	0,15	6%	1,8E-10	8,8E-11	3,9E-10	8,2E-10
81	9,8	9,6	2,02	2,42	26	0,23	12%	3,8E-11	3,4E-11	1,5E-10	3,2E-10
82	1,4	1,2	0,48	0,53	14	0,22	6%	6,5E-12	1,8E-12	7,9E-12	1,2E-11
83	3,6	3,6	1,06	1,33	18	0,27	7%	5,1E-11	1,1E-11	5,0E-11	9,8E-11
84	2,0	1,8	0,84	0,95	18	0,25	7%	3,3E-11	3,0E-12	1,4E-11	2,5E-11
85	1,7	1,5	0,68	1,00	14	0,22	6%	1,1E-11	2,7E-12	1,2E-11	2,5E-11
86	2,8	2,5	1,37	1,74	13	0,21	6%	3,6E-11	7,6E-12	3,4E-11	6,5E-11
87	2,0	1,7	0,79	0,66	19	0,25	8%	2,7E-11	2,8E-12	1,3E-11	2,0E-11
88	1,8	1,6	0,46	0,50	19	0,25	8%	1,2E-11	2,2E-12	9,8E-12	1,7E-11
89	1,7	1,7	0,44	0,33	15	0,22	7%	1,5E-11	2,6E-12	1,2E-11	1,9E-11
90	1,6	1,5	0,52	0,62	14	0,23	7%	1,3E-11	2,4E-12	1,1E-11	1,6E-11
91	1,5	1,5	0,37	0,39	19	0,26	7%	1,6E-11	1,8E-12	7,8E-12	1,4E-11
92	1,1	1,0	0,48	0,45	15	0,23	7%	1,4E-11	1,1E-12	5,0E-12	9,3E-12
93	1,2	1,1	0,48	0,50	17	0,26	7%	1,1E-11	1,1E-12	5,1E-12	1,1E-11
94	1,2	1,1	0,41	0,44	17	0,32	5%	1,3E-11	1,7E-12	7,7E-12	1,7E-11
95	2,2	2,1	0,92	1,21	16	0,25	7%	2,5E-11	4,4E-12	2,0E-11	4,4E-11
96	1,2	1,2	0,46	0,51	17	0,32	5%	2,1E-11	1,8E-12	8,1E-12	1,7E-11
97	2,4	2,2	0,99	0,98	16	0,24	7%	1,9E-11	5,0E-12	2,3E-11	4,8E-11
98	1,6	1,4	0,65	0,58	17	0,25	7%	1,3E-11	2,2E-12	9,8E-12	1,9E-11
99	1,3	1,2	0,39	0,34	17	0,28	6%	1,3E-11	1,6E-12	7,2E-12	1,5E-11
100	1,7	1,7	0,57	0,79	15	0,23	6%	2,0E-11	2,6E-12	1,2E-11	2,4E-11
101	1,5	1,4	0,59	0,69	15	0,28	6%	1,7E-11	2,7E-12	1,2E-11	2,4E-11
102	2,7	2,4	1,12	1,06	17	0,25	7%	3,7E-11	6,2E-12	2,8E-11	6,1E-11
103	1,8	1,7	0,50	0,69	17	0,27	7%	2,6E-11	3,0E-12	1,3E-11	3,2E-11
104	1,5	1,5	0,62	0,67	18	0,31	6%	2,4E-11	2,5E-12	1,1E-11	2,3E-11
105	3,5	3,4	1,22	1,50	17	0,27	6%	2,3E-11	1,2E-11	5,4E-11	1,2E-10
106	2,1	1,9	0,80	0,81	17	0,25	7%	2,3E-11	3,8E-12	1,7E-11	3,5E-11
107	1,7	1,5	0,76	0,65	17	0,27	7%	3,1E-11	2,5E-12	1,1E-11	2,3E-11
108	1,4	1,2	0,70	0,70	15	0,24	6%	1,4E-11	2,0E-12	8,9E-12	1,8E-11

Tableau A.2- Caractéristiques des échantillons spunbond îles-en-mer pour la modélisation de la perméabilité

Référénc e	Caractéristiques du média					Perméabilité		
	diamètre des fibres - df ( $\mu\text{m}$ )	Surface spécifique ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	Masse surfaccique ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	Epaisseur (mm)	Compacité (%)	Perméabilité expérimentale ( $\text{m}^2$ )	Perméabilité de Davies ( $\text{m}^2$ )	Perméabilité Jackson et James ( $\text{m}^2$ )
1	7,7	0,52	31	0,2	12%	6,1E-11	2,0E-11	2,2E-11
2	5,2	0,77	38	0,2	15%	5,0E-11	6,1E-12	6,7E-12
3	1,8	2,18	50	0,4	10%	5,0E-11	1,6E-12	1,9E-12
4	6,7	0,60	50	0,5	9%	9,8E-11	2,4E-11	2,7E-11
5	5,4	0,74	48	0,4	10%	9,8E-11	1,4E-11	1,6E-11
6	2,8	1,42	43	0,3	16%	5,1E-11	1,6E-12	1,8E-12
7	5,0	0,79	34	0,2	14%	4,4E-11	6,2E-12	6,8E-12
8	10,2	0,39	49	0,5	9%	9,7E-11	6,1E-11	6,9E-11
9	2,2	1,85	49	0,3	14%	6,8E-11	1,2E-12	1,3E-12
10	6,0	0,67	36	0,2	14%	4,5E-11	8,8E-12	9,6E-12
11	3,6	1,11	41	0,3	16%	3,9E-11	2,7E-12	3,0E-12
12	3,3	1,22	36	0,3	12%	5,1E-11	3,5E-12	4,0E-12
13	2,2	1,80	50	0,3	15%	5,7E-11	1,1E-12	1,2E-12
14	6,6	0,60	38	0,3	14%	4,9E-11	1,1E-11	1,2E-11
15	8,0	0,50	32	0,3	12%	6,2E-11	2,3E-11	2,5E-11
16	4,0	1,00	36	0,2	16%	4,5E-11	3,3E-12	3,7E-12
17	5,7	0,70	54	0,5	11%	8,5E-11	1,4E-11	1,5E-11
18	6,5	0,62	56	0,5	11%	9,7E-11	1,8E-11	2,0E-11
19	4,9	0,81	52	0,4	13%	6,1E-11	7,0E-12	7,8E-12
20	5,5	0,72	55	0,5	10%	7,8E-11	1,4E-11	1,5E-11
21	3,1	1,30	55	0,4	15%	4,0E-11	2,2E-12	2,5E-12
22	2,7	1,48	35	0,2	14%	4,2E-11	1,8E-12	2,1E-12
23	6,4	0,63	39	0,2	15%	4,3E-11	9,0E-12	9,9E-12
24	6,9	0,58	54	0,4	13%	6,5E-11	1,5E-11	1,6E-11
25	8,0	0,50	57	0,4	13%	6,9E-11	1,9E-11	2,1E-11
26	2,6	1,54	53	0,3	16%	4,7E-11	1,3E-12	1,5E-12
27	1,8	2,24	49	0,4	10%	3,7E-11	1,4E-12	1,7E-12
28	4,0	1,00	50	0,4	10%	3,9E-11	7,1E-12	8,1E-12
29	8,1	0,49	49	0,4	13%	4,7E-11	2,1E-11	2,3E-11
30	5,7	0,70	52	0,5	10%	8,7E-11	1,6E-11	1,8E-11
31	4,0	0,99	48	0,3	14%	3,7E-11	4,1E-12	4,6E-12
32	7,0	0,57	34	0,3	13%	5,9E-11	1,5E-11	1,7E-11
33	3,8	1,05	36	0,2	14%	4,4E-11	3,5E-12	4,0E-12
34	3,4	1,17	35	0,2	16%	4,4E-11	2,4E-12	2,7E-12
35	5,3	0,75	51	0,5	11%	6,6E-11	1,1E-11	1,2E-11
36	4,3	0,93	53	0,4	13%	4,7E-11	5,1E-12	5,7E-12
37	8,0	0,50	52	0,4	13%	5,1E-11	1,8E-11	1,9E-11

## Annexe A : Modélisation de la perméabilité

38	3,7	1,07	56	0,5	11%	5,1E-11	6,1E-12	6,9E-12
39	2,1	1,94	61	0,3	19%	2,5E-11	5,6E-13	6,4E-13
40	2,7	1,50	48	0,4	11%	4,2E-11	3,0E-12	3,4E-12
41	6,9	0,58	50	0,4	14%	3,0E-11	1,2E-11	1,3E-11
42	9,8	0,41	48	0,5	9%	9,1E-11	4,9E-11	5,5E-11
43	3,9	1,03	49	0,5	9%	4,0E-11	8,9E-12	1,0E-11
44	7,5	0,54	59	0,4	15%	5,7E-11	1,3E-11	1,4E-11
45	4,8	0,83	46	0,3	14%	2,9E-11	6,1E-12	6,8E-12
46	3,8	1,06	59	0,3	18%	2,3E-11	2,1E-12	2,3E-12
47	2,1	1,86	52	0,4	11%	1,7E-11	1,8E-12	2,1E-12
48	4,9	0,82	52	0,3	14%	3,4E-11	5,8E-12	6,4E-12
49	2,4	1,66	61	0,3	20%	1,6E-11	6,8E-13	7,7E-13
50	6,6	0,60	66	0,4	18%	3,8E-11	7,2E-12	7,8E-12
51	7,4	0,54	98	0,8	11%	7,4E-11	2,1E-11	2,3E-11
52	2,7	1,46	48	0,5	9%	3,2E-11	4,0E-12	4,7E-12
53	3,2	1,25	56	0,4	12%	3,4E-11	3,6E-12	4,2E-12
54	5,0	0,79	45	0,3	14%	3,0E-11	6,7E-12	7,4E-12
55	4,9	0,82	96	0,8	12%	5,3E-11	8,5E-12	9,5E-12
56	7,2	0,55	100	0,8	12%	5,8E-11	1,9E-11	2,1E-11
57	3,9	1,03	101	0,6	16%	1,5E-11	2,9E-12	3,3E-12
58	3,3	1,22	95	0,8	11%	3,1E-11	4,3E-12	4,9E-12
59	2,6	1,53	99	0,6	16%	1,8E-11	1,3E-12	1,5E-12
60	4,5	0,90	100	0,6	15%	1,4E-11	4,3E-12	4,8E-12
61	1,9	2,14	91	0,6	15%	5,0E-12	7,8E-13	9,1E-13
62	2,3	1,70	105	0,6	16%	5,1E-12	1,0E-12	1,2E-12

## ANNEXE B : MODELISATION DE L'EFFICACITE

Tableau B.1 - Caractéristiques des médias fibreux meltblown

Caractéristiques du média									
Réf	Diamètre moyen des fibres ( $\mu\text{m}$ )	Compacité (%)	Epaisseur (mm)	Masse surfacique ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	Efficacité à $0,3\mu\text{m}$	Perméabilité (Davies) ( $\text{m}^2$ )	Perméabilité k mesuré ( $\text{m}^2$ )	$\beta_{\text{yeh}}$	
1	0,8	9%	0,1	11	42% +/- 3%	7,24E-13	4,2E-12	0,17	
2	0,8	9%	0,2	17	65% +/- 2%	6,72E-13	6,0E-12	0,11	
3	0,8	8%	0,2	11	44% +/- 2%	1,41E-12	8,3E-12	0,17	
4	0,9	4%	0,3	12	57% +/- 1%	1,00E-12	5,0E-12	0,20	
5	0,9	8%	0,2	18	55% +/- 4%	6,69E-13	4,3E-12	0,16	
6	0,9	10%	0,2	19	47% +/- 2%	1,41E-12	9,1E-12	0,16	
7	0,9	10%	0,1	11	23% +/- 6%	7,43E-13	4,3E-12	0,17	
8	0,9	10%	0,1	14	8% +/- 6%	1,31E-12	8,2E-12	0,16	
9	1,0	9%	0,2	15	56% +/- 2%	1,84E-12	1,8E-11	0,10	
10	1,0	7%	0,2	15	65% +/- 4%	3,12E-13	1,1E-11	0,03	
11	1,0	7%	0,2	15	31% +/- 2%	7,39E-13	5,2E-12	0,14	
12	1,0	8%	0,2	12	32% +/- 2%	3,72E-13	5,7E-12	0,07	
13	1,0	8%	0,2	12	53% +/- 1%	5,02E-13	4,9E-12	0,10	
14	1,0	8%	0,2	12	51% +/- 1%	3,70E-13	6,2E-12	0,06	
15	1,0	8%	0,2	11	44% +/- 1%	5,88E-13	4,9E-12	0,12	
16	1,0	5%	0,3	13	51% +/- 0%	9,61E-13	5,7E-12	0,17	
17	1,1	7%	0,2	12	49% +/- 1%	7,01E-13	4,2E-12	0,17	
18	1,1	7%	0,3	17	31% +/- 2%	7,85E-13	4,8E-12	0,16	
19	1,1	6%	0,3	17	47% +/- 2%	6,51E-13	5,9E-12	0,11	
20	1,1	6%	0,2	12	38% +/- 1%	4,78E-13	3,8E-12	0,13	
21	1,2	6%	0,3	17	23% +/- 2%	1,93E-12	9,2E-12	0,21	
22	1,2	9%	0,1	12	49% +/- 3%	3,74E-12	2,5E-11	0,15	
23	1,2	10%	0,1	11	51% +/- 1%	3,91E-12	1,6E-11	0,25	
24	1,2	8%	0,2	15	57% +/- 2%	4,81E-12	5,5E-11	0,09	
25	1,2	11%	0,1	10	36% +/- 4%	2,75E-12	5,8E-11	0,05	
26	1,2	6%	0,2	15	34% +/- 2%	9,09E-12	4,2E-11	0,21	
27	1,2	8%	0,1	11	63% +/- 2%	7,87E-13	6,6E-12	0,12	
28	1,2	7%	0,3	17	39% +/- 2%	3,76E-13	3,2E-11	0,01	
29	1,2	7%	0,2	14	49% +/- 2%	2,66E-11	7,8E-11	0,34	
30	1,3	12%	0,2	28	60% +/- 1%	2,91E-12	2,1E-11	0,14	
31	1,3	7%	0,2	13	59% +/- 1%	6,45E-12	3,7E-11	0,18	
32	1,3	10%	0,1	11	39% +/- 8%	1,56E-12	3,0E-11	0,05	
33	1,3	6%	0,2	12	53% +/- 1%	1,41E-12	9,2E-12	0,15	

Annexe B : Modélisation de l'efficacité

34	1,3	7%	0,3	16	64% +/- 3%	1,72E-12	1,2E-11	0,14
35	1,4	8%	0,2	13	59% +/- 2%	9,73E-13	7,5E-12	0,13
36	1,4	11%	0,1	11	42% +/- 2%	5,32E-13	9,3E-12	0,06
37	1,4	8%	0,2	13	50% +/- 2%	1,22E-12	2,1E-11	0,06
38	1,4	10%	0,1	12	45% +/- 3%	7,35E-13	1,8E-11	0,04
39	1,4	6%	0,3	15	29% +/- 2%	1,23E-12	2,4E-11	0,05
40	1,4	7%	0,3	17	31% +/- 2%	4,79E-13	3,8E-12	0,13
41	1,5	6%	0,3	18	22% +/- 2%	3,51E-13	8,8E-12	0,04
42	1,5	7%	0,3	17	13% +/- 2%	1,35E-12	1,7E-11	0,08
43	1,5	7%	0,3	19	26% +/- 2%	4,79E-13	1,3E-11	0,04
44	1,5	7%	0,2	14	29% +/- 2%	9,63E-13	2,7E-11	0,04
45	1,5	16%	0,1	14	39% +/- 1%	1,39E-12	6,5E-12	0,21
46	1,5	7%	0,2	14	11% +/- 2%	1,06E-11	5,1E-11	0,21
47	1,6	8%	0,5	38	49% +/- 4%	2,38E-12	3,3E-11	0,07
48	1,6	8%	0,3	19	37% +/- 2%	2,20E-12	1,1E-11	0,19
49	1,7	7%	0,2	15	19% +/- 2%	5,73E-12	3,6E-11	0,16
50	1,7	13%	0,1	16	29% +/- 3%	2,08E-12	2,7E-11	0,08
51	1,7	6%	0,2	14	7% +/- 1%	1,79E-12	1,2E-11	0,15
52	1,7	8%	0,3	19	12% +/- 2%	2,31E-12	1,5E-11	0,15
53	1,7	7%	0,2	15	17% +/- 2%	1,94E-12	1,3E-11	0,15
54	1,7	7%	0,3	17	16% +/- 2%	1,61E-12	1,6E-11	0,10
55	1,8	10%	0,1	12	45% +/- 4%	8,40E-13	1,4E-11	0,06
56	1,8	7%	0,3	18	8% +/- 2%	9,55E-13	1,1E-11	0,08
57	1,9	7%	0,3	17	7% +/- 2%	1,44E-12	1,3E-11	0,11
58	1,9	7%	0,2	15	63% +/- 6%	3,70E-12	2,5E-11	0,15
59	2,1	7%	0,2	16	14% +/- 2%	1,56E-12	2,1E-11	0,08
60	2,2	7%	0,2	16	15% +/- 2%	3,89E-12	1,9E-11	0,21
61	2,3	12%	0,1	12	34% +/- 1%	1,69E-12	1,3E-11	0,14
62	2,4	7%	0,3	17	6% +/- 2%	1,41E-12	1,3E-11	0,11
63	2,5	7%	0,2	12	41% +/- 5%	2,70E-12	2,0E-11	0,13
64	2,5	7%	0,2	13	5% +/- 2%	2,33E-12	1,7E-11	0,14
65	2,5	9%	0,2	16	33% +/- 5%	4,91E-12	3,7E-11	0,13
66	2,6	9%	0,2	17	51% +/- 1%	2,50E-12	2,6E-11	0,10
67	3,0	8%	0,2	13	47% +/- 5%	2,20E-12	2,4E-11	0,09
68	3,4	7%	0,3	17	7% +/- 2%	1,06E-11	2,3E-11	0,47
69	3,6	7%	0,3	18	4% +/- 2%	3,05E-12	2,3E-11	0,14
70	3,6	8%	0,2	13	33% +/- 3%	1,85E-12	3,1E-11	0,06
71	5,9	7%	0,2	15	45% +/- 5%	1,40E-12	1,4E-11	0,10

Tableau B.2 - Modélisation de l'efficacité sans correction (dp: 0,3 µm Vf: 5 cm/s) pour les échantillons meltblown

## Modélisation de l'efficacité sans correction (dp: 0,3 µm Vf: 5 cm/s)

Réf	Micret-Gustavsson	Lee-Liu	Liu-Rubow	Payet	Gougeon	Stechkina <i>et al.</i>	Kirsch <i>et al.</i>
1	93%	63%	82%	82%	63%	93%	93%
2	99%	80%	94%	94%	80%	99%	99%
3	98%	74%	90%	90%	74%	97%	98%
4	97%	72%	89%	89%	72%	96%	97%
5	99%	79%	94%	94%	80%	99%	99%
6	95%	65%	84%	83%	65%	93%	95%
7	99%	79%	94%	93%	79%	98%	99%
8	100%	83%	96%	96%	83%	99%	100%
9	99%	83%	94%	94%	83%	98%	99%
10	100%	96%	100%	100%	96%	100%	100%
11	98%	76%	92%	92%	76%	98%	98%
12	100%	98%	100%	100%	98%	100%	100%
13	100%	95%	99%	99%	95%	100%	100%
14	100%	90%	99%	98%	90%	100%	100%
15	95%	66%	85%	85%	66%	95%	95%
16	100%	85%	96%	96%	85%	99%	100%
17	97%	70%	88%	88%	70%	96%	97%
18	99%	80%	94%	94%	80%	98%	99%
19	100%	90%	98%	98%	90%	100%	100%
20	100%	91%	99%	99%	91%	100%	100%
21	98%	75%	90%	90%	75%	96%	98%
22	96%	71%	86%	86%	71%	93%	97%
23	85%	52%	69%	68%	53%	80%	86%
24	100%	89%	97%	97%	89%	99%	100%
25	71%	37%	53%	53%	37%	66%	73%
26	89%	58%	72%	71%	58%	83%	90%
27	90%	59%	78%	78%	59%	90%	91%
28	100%	94%	99%	99%	94%	100%	100%
29	72%	41%	50%	49%	41%	63%	72%
30	99%	80%	93%	93%	80%	97%	99%
31	93%	66%	80%	80%	66%	89%	94%
32	100%	99%	100%	100%	99%	100%	100%
33	97%	75%	90%	90%	75%	96%	98%
34	99%	82%	94%	94%	82%	98%	99%
35	99%	79%	93%	93%	79%	98%	99%
36	100%	99%	100%	100%	99%	100%	100%
37	100%	98%	100%	100%	98%	100%	100%
38	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%
39	100%	99%	100%	100%	99%	100%	100%
40	100%	87%	97%	97%	88%	100%	100%
41	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%
42	100%	95%	99%	99%	96%	100%	100%
43	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%
44	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%
45	93%	62%	81%	81%	62%	91%	94%
46	26%	11%	16%	16%	11%	22%	27%
47	78%	43%	61%	61%	44%	73%	80%

## Annexe B : Modélisation de l'efficacité

48	79%	43%	62%	61%	44%	74%	80%
49	38%	17%	25%	24%	17%	32%	39%
50	83%	49%	67%	67%	49%	79%	84%
51	88%	54%	73%	73%	55%	85%	89%
52	76%	42%	59%	59%	42%	72%	78%
53	85%	50%	69%	68%	50%	81%	86%
54	93%	62%	80%	80%	62%	90%	93%
55	100%	86%	97%	97%	86%	99%	100%
56	99%	83%	96%	95%	83%	99%	99%
57	98%	77%	92%	92%	77%	98%	99%
58	60%	29%	43%	42%	29%	54%	62%
59	98%	73%	90%	90%	74%	96%	98%
60	56%	27%	40%	40%	27%	51%	58%
61	91%	59%	78%	77%	59%	88%	92%
62	97%	71%	88%	88%	71%	95%	97%
63	73%	38%	55%	55%	38%	67%	74%
64	86%	52%	71%	70%	52%	82%	87%
65	48%	23%	33%	33%	23%	42%	50%
66	79%	45%	62%	62%	45%	75%	81%
67	90%	57%	76%	75%	57%	87%	91%
68	26%	11%	16%	16%	12%	22%	27%
69	69%	36%	51%	51%	36%	63%	71%
70	90%	57%	76%	76%	57%	87%	91%
71	95%	67%	85%	85%	67%	94%	96%

---

Tableau B.3 - Modélisation de l'efficacité avec correction (dp: 0,3 µm Vf: 5 cm/s) pour les échantillons meltblown

## Modélisation de l'efficacité avec correction (dp: 0,3 µm Vf: 5 cm/s)

Réf	Miecret-Gustavsson	Lee-Liu	Liu-Rubow	Payet	Gougeon	Stechkina et al.	Kirsch et al.
1	37%	16%	26%	25%	16%	36%	37%
2	41%	16%	27%	27%	17%	39%	40%
3	48%	20%	33%	32%	20%	44%	48%
4	52%	23%	36%	36%	23%	49%	52%
5	51%	22%	36%	35%	22%	49%	50%
6	37%	15%	25%	24%	15%	34%	38%
7	54%	23%	38%	37%	23%	51%	53%
8	57%	25%	40%	39%	25%	53%	57%
9	37%	16%	25%	25%	17%	34%	39%
10	25%	9%	16%	15%	9%	24%	22%
11	44%	18%	30%	30%	18%	42%	43%
12	56%	24%	39%	39%	24%	55%	53%
13	56%	26%	41%	41%	26%	56%	55%
14	34%	13%	22%	22%	13%	34%	32%
15	30%	12%	20%	20%	12%	30%	30%
16	59%	28%	43%	43%	28%	56%	60%
17	44%	18%	30%	30%	19%	42%	43%
18	51%	23%	37%	37%	23%	50%	52%
19	52%	23%	37%	36%	23%	50%	51%
20	60%	26%	42%	42%	26%	58%	57%
21	55%	25%	39%	38%	25%	50%	56%
22	38%	17%	25%	25%	17%	33%	40%
23	38%	17%	25%	25%	17%	33%	39%
24	39%	18%	26%	26%	18%	34%	41%
25	6%	2%	4%	3%	2%	5%	6%
26	37%	17%	24%	24%	17%	31%	38%
27	24%	10%	17%	17%	10%	24%	25%
28	10%	3%	6%	6%	3%	9%	9%
29	35%	16%	21%	21%	16%	29%	35%
30	44%	20%	30%	30%	20%	39%	46%
31	38%	17%	25%	25%	17%	33%	39%
32	51%	23%	36%	35%	23%	47%	52%
33	43%	19%	30%	30%	19%	40%	44%
34	47%	21%	33%	33%	21%	43%	49%
35	42%	18%	29%	29%	18%	40%	43%
36	55%	24%	39%	38%	24%	53%	53%
37	46%	20%	32%	32%	20%	43%	47%
38	54%	23%	37%	37%	23%	51%	53%
39	50%	22%	35%	35%	22%	46%	50%
40	50%	23%	37%	37%	23%	51%	50%
41	67%	30%	48%	48%	30%	66%	63%
42	49%	22%	35%	34%	22%	46%	50%
43	55%	23%	38%	38%	23%	53%	52%
44	49%	21%	34%	34%	21%	46%	49%
45	44%	19%	30%	30%	19%	41%	45%
46	6%	2%	4%	4%	2%	5%	6%
47	10%	4%	7%	7%	4%	9%	11%

## Annexe B : Modélisation de l'efficacité

48	26%	10%	17%	17%	11%	23%	27%
49	7%	3%	4%	4%	3%	6%	8%
50	13%	5%	8%	8%	5%	11%	13%
51	27%	11%	18%	18%	11%	24%	28%
52	20%	8%	13%	13%	8%	17%	21%
53	25%	10%	16%	16%	10%	23%	26%
54	23%	9%	15%	15%	9%	21%	24%
55	29%	11%	19%	19%	11%	27%	28%
56	35%	14%	23%	23%	14%	32%	35%
57	37%	15%	24%	24%	15%	34%	37%
58	13%	5%	8%	8%	5%	11%	13%
59	25%	9%	16%	16%	10%	22%	25%
60	16%	6%	10%	10%	6%	14%	17%
61	28%	11%	18%	18%	11%	25%	29%
62	31%	12%	20%	20%	12%	28%	31%
63	16%	6%	10%	10%	6%	14%	17%
64	24%	10%	15%	15%	10%	21%	25%
65	8%	3%	5%	5%	3%	7%	9%
66	14%	6%	9%	9%	6%	12%	15%
67	19%	8%	12%	12%	8%	17%	20%
68	14%	6%	8%	8%	6%	11%	14%
69	15%	6%	9%	9%	6%	13%	15%
70	13%	5%	8%	8%	5%	12%	13%
71	26%	10%	17%	17%	10%	23%	26%

Tableau B.4 - Caractéristiques des médias fibreux spunbond îles-en-mer

Caractéristiques du média											
Référence	diamètre des fibres - $\mu\text{m}$	Surface spécifique ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	Compacité (%)	Épaisseur (mm)	Masse surfacique ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	Efficacité à $0,3\mu\text{m}$		Perméabilité (Davies) ( $\text{m}^2$ )	Perméabilité mesurée ( $\text{m}^2$ )	$\beta_{\text{yeh}}$	
1	7,7	0,52	12%	0,2	31	0%	+/- 2%	2,0E-11	6,1E-11	0,32	
2	5,2	0,77	15%	0,2	38	1%	+/- 2%	6,1E-12	5,0E-11	0,12	
3	1,8	2,18	10%	0,4	50	2%	+/- 2%	1,6E-12	5,0E-11	0,03	
4	6,7	0,60	9%	0,5	50	2%	+/- 2%	2,4E-11	9,8E-11	0,25	
5	5,4	0,74	10%	0,4	48	4%	+/- 2%	1,4E-11	9,8E-11	0,14	
6	2,8	1,42	16%	0,3	43	4%	+/- 2%	1,6E-12	5,1E-11	0,03	
7	5,0	0,79	14%	0,2	34	4%	+/- 2%	6,2E-12	4,4E-11	0,14	
8	10,2	0,39	9%	0,5	49	5%	+/- 2%	6,1E-11	9,7E-11	0,63	
9	2,2	1,85	14%	0,3	49	5%	+/- 2%	1,2E-12	6,8E-11	0,02	
10	6,0	0,67	14%	0,2	36	5%	+/- 2%	8,8E-12	4,5E-11	0,20	
11	3,6	1,11	16%	0,3	41	5%	+/- 2%	2,7E-12	3,9E-11	0,07	
12	3,3	1,22	12%	0,3	36	5%	+/- 2%	3,5E-12	5,1E-11	0,07	
13	2,2	1,80	15%	0,3	50	5%	+/- 2%	1,1E-12	5,7E-11	0,02	
14	6,6	0,60	14%	0,3	38	6%	+/- 2%	1,1E-11	4,9E-11	0,22	
15	8,0	0,50	12%	0,3	32	6%	+/- 2%	2,3E-11	6,2E-11	0,37	
16	4,0	1,00	16%	0,2	36	6%	+/- 2%	3,3E-12	4,5E-11	0,07	
17	5,7	0,70	11%	0,5	54	6%	+/- 2%	1,4E-11	8,5E-11	0,16	
18	6,5	0,62	11%	0,5	56	6%	+/- 2%	1,8E-11	9,7E-11	0,18	
19	4,9	0,81	13%	0,4	52	6%	+/- 2%	7,0E-12	6,1E-11	0,11	
20	5,5	0,72	10%	0,5	55	7%	+/- 2%	1,4E-11	7,8E-11	0,17	
21	3,1	1,30	15%	0,4	55	7%	+/- 2%	2,2E-12	4,0E-11	0,06	
22	2,7	1,48	14%	0,2	35	7%	+/- 2%	1,8E-12	4,2E-11	0,04	
23	6,4	0,63	15%	0,2	39	7%	+/- 2%	9,0E-12	4,3E-11	0,21	
24	6,9	0,58	13%	0,4	54	7%	+/- 2%	1,5E-11	6,5E-11	0,23	
25	8,0	0,50	13%	0,4	57	7%	+/- 2%	1,9E-11	6,9E-11	0,27	
26	2,6	1,54	16%	0,3	53	7%	+/- 2%	1,3E-12	4,7E-11	0,03	
27	1,8	2,24	10%	0,4	49	7%	+/- 2%	1,4E-12	3,7E-11	0,04	
28	4,0	1,00	10%	0,4	50	8%	+/- 2%	7,1E-12	3,9E-11	0,18	
29	8,1	0,49	13%	0,4	49	8%	+/- 2%	2,1E-11	4,7E-11	0,44	
30	5,7	0,70	10%	0,5	52	8%	+/- 2%	1,6E-11	8,7E-11	0,18	
31	4,0	0,99	14%	0,3	48	8%	+/- 2%	4,1E-12	3,7E-11	0,11	
32	7,0	0,57	13%	0,3	34	8%	+/- 2%	1,5E-11	5,9E-11	0,26	
33	3,8	1,05	14%	0,2	36	8%	+/- 2%	3,5E-12	4,4E-11	0,08	
34	3,4	1,17	16%	0,2	35	8%	+/- 2%	2,4E-12	4,4E-11	0,06	
35	5,3	0,75	11%	0,5	51	8%	+/- 2%	1,1E-11	6,6E-11	0,16	

Annexe B : Modélisation de l'efficacité

36	4,3	0,93	13%	0,4	53	8%	+/-	2%	5,1E-12	4,7E-11	0,11
37	8,0	0,50	13%	0,4	52	9%	+/-	2%	1,8E-11	5,1E-11	0,34
38	3,7	1,07	11%	0,5	56	9%	+/-	2%	6,1E-12	5,1E-11	0,12
39	2,1	1,94	19%	0,3	61	9%	+/-	2%	5,6E-13	2,5E-11	0,02
40	2,7	1,50	11%	0,4	48	9%	+/-	2%	3,0E-12	4,2E-11	0,07
41	6,9	0,58	14%	0,4	50	10%	+/-	2%	1,2E-11	3,0E-11	0,40
42	9,8	0,41	9%	0,5	48	10%	+/-	2%	4,9E-11	9,1E-11	0,54
43	3,9	1,03	9%	0,5	49	10%	+/-	2%	8,9E-12	4,0E-11	0,22
44	7,5	0,54	15%	0,4	59	10%	+/-	2%	1,3E-11	5,7E-11	0,23
45	4,8	0,83	14%	0,3	46	11%	+/-	2%	6,1E-12	2,9E-11	0,21
46	3,8	1,06	18%	0,3	59	11%	+/-	2%	2,1E-12	2,3E-11	0,09
47	2,1	1,86	11%	0,4	52	11%	+/-	2%	1,8E-12	1,7E-11	0,10
48	4,9	0,82	14%	0,3	52	12%	+/-	2%	5,8E-12	3,4E-11	0,17
49	2,4	1,66	20%	0,3	61	12%	+/-	2%	6,8E-13	1,6E-11	0,04
50	6,6	0,60	18%	0,4	66	12%	+/-	2%	7,2E-12	3,8E-11	0,19
51	7,4	0,54	11%	0,8	98	13%	+/-	2%	2,1E-11	7,4E-11	0,28
52	2,7	1,46	9%	0,5	48	13%	+/-	2%	4,0E-12	3,2E-11	0,13
53	3,2	1,25	12%	0,4	56	15%	+/-	2%	3,6E-12	3,4E-11	0,11
54	5,0	0,79	14%	0,3	45	17%	+/-	2%	6,7E-12	3,0E-11	0,22
55	4,9	0,82	12%	0,8	96	17%	+/-	2%	8,5E-12	5,3E-11	0,16
56	7,2	0,55	12%	0,8	100	23%	+/-	2%	1,9E-11	5,8E-11	0,32
57	3,9	1,03	16%	0,6	101	24%	+/-	2%	2,9E-12	1,5E-11	0,20
58	3,3	1,22	11%	0,8	95	26%	+/-	2%	4,3E-12	3,1E-11	0,14
59	2,6	1,53	16%	0,6	99	29%	+/-	2%	1,3E-12	1,8E-11	0,07
60	4,5	0,90	15%	0,6	100	34%	+/-	2%	4,3E-12	1,4E-11	0,32
61	1,9	2,14	15%	0,6	91	46%	+/-	2%	7,8E-13	5,0E-12	0,16
62	2,3	1,70	16%	0,6	105	56%	+/-	2%	1,0E-12	5,1E-12	0,20

Tableau B.5 - Modélisation de l'efficacité sans correction (dp: 0,3  $\mu\text{m}$  Vf: 5 cm/s) pour les échantillons spunbond îles-en-mer

Modélisation de l'efficacité sans correction (dp: 0,3 $\mu\text{m}$ Vf: 5 cm/s)							
Référence	Micret-Gustavsson	Lee-Liu	Liu-Rubow	Payet	Gougeon	Stechkina et al.	Kirsch et al.
1	11%	5%	6%	6%	5%	9%	12%
2	31%	14%	20%	20%	14%	26%	33%
3	98%	77%	91%	91%	77%	97%	98%
4	19%	9%	11%	11%	9%	15%	20%
5	28%	13%	17%	17%	13%	23%	29%
6	82%	50%	68%	67%	51%	79%	84%
7	29%	13%	19%	18%	13%	24%	30%
8	9%	4%	5%	5%	4%	7%	9%
9	97%	76%	91%	91%	77%	97%	98%
10	22%	10%	14%	13%	10%	18%	23%
11	61%	32%	45%	44%	32%	55%	63%
12	57%	29%	41%	41%	29%	51%	60%
13	98%	77%	92%	91%	77%	97%	98%
14	20%	9%	12%	12%	9%	15%	20%
15	11%	5%	6%	6%	5%	8%	11%
16	47%	23%	32%	32%	23%	41%	49%
17	32%	15%	20%	19%	15%	26%	33%
18	24%	11%	14%	14%	11%	19%	25%
19	41%	20%	27%	27%	20%	34%	43%
20	31%	14%	19%	19%	14%	25%	32%
21	82%	50%	67%	66%	50%	78%	84%
22	76%	43%	60%	59%	43%	72%	78%
23	22%	10%	13%	13%	10%	17%	23%
24	22%	10%	13%	13%	10%	17%	23%
25	20%	9%	11%	11%	9%	15%	20%
26	93%	67%	83%	83%	67%	92%	95%
27	98%	80%	93%	93%	80%	98%	99%
28	47%	23%	31%	31%	23%	40%	49%
29	16%	7%	9%	9%	7%	12%	16%
30	28%	13%	17%	17%	13%	22%	28%
31	55%	28%	38%	38%	28%	48%	57%
32	15%	7%	9%	9%	7%	11%	15%
33	49%	24%	34%	34%	24%	43%	52%
34	59%	30%	43%	43%	31%	54%	61%
35	35%	16%	22%	22%	16%	29%	36%
36	52%	26%	36%	36%	26%	45%	54%
37	18%	8%	10%	10%	8%	14%	18%

## Annexe B : Modélisation de l'efficacité

38	58%	30%	41%	40%	30%	51%	60%
39	100%	91%	98%	98%	91%	100%	100%
40	81%	49%	65%	65%	49%	76%	83%
41	24%	11%	15%	15%	11%	19%	25%
42	11%	5%	6%	6%	5%	8%	10%
43	46%	22%	30%	30%	22%	39%	48%
44	25%	11%	15%	15%	11%	19%	25%
45	40%	19%	26%	26%	19%	33%	41%
46	72%	41%	56%	56%	41%	67%	75%
47	95%	68%	85%	84%	68%	93%	95%
48	43%	21%	29%	28%	21%	36%	45%
49	99%	82%	94%	94%	82%	99%	99%
50	36%	17%	23%	23%	17%	29%	37%
51	32%	15%	19%	19%	15%	26%	33%
52	74%	42%	57%	56%	42%	68%	76%
53	74%	42%	57%	56%	42%	68%	76%
54	37%	18%	24%	24%	18%	31%	39%
55	60%	31%	41%	41%	32%	51%	62%
56	34%	16%	21%	21%	16%	27%	35%
57	85%	55%	70%	70%	55%	80%	87%
58	88%	57%	72%	72%	57%	82%	89%
59	99%	85%	96%	95%	85%	99%	99%
60	74%	43%	56%	56%	43%	67%	76%
61	100%	98%	100%	100%	98%	100%	100%
62	100%	93%	99%	99%	93%	100%	100%

Tableau B.6 - Modélisation de l'efficacité avec correction (dp: 0,3 µm Vf: 5 cm/s) pour les échantillons spunbond îles-en-mer

Modélisation de l'efficacité avec correction (dp: 0,3 µm Vf: 5 cm/s)							
Référence	Micret-Gustavsson	Lee-Liu	Liu-Rubow	Payet	Gougeon	Stechkina et al.	Kirsch et al.
1	4%	2%	2%	2%	2%	3%	4%
2	4%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
3	12%	5%	8%	8%	5%	11%	12%
4	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
5	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
6	5%	2%	3%	3%	2%	5%	5%
7	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
8	6%	3%	3%	3%	3%	4%	6%
9	6%	2%	4%	4%	2%	6%	6%
10	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
11	6%	3%	4%	4%	3%	5%	7%
12	6%	2%	4%	4%	2%	5%	6%
13	7%	3%	5%	4%	3%	6%	7%
14	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
15	4%	2%	2%	2%	2%	3%	4%
16	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
17	6%	3%	3%	3%	3%	5%	6%
18	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
19	6%	2%	4%	4%	2%	5%	6%
20	6%	3%	4%	4%	3%	5%	6%
21	9%	4%	6%	6%	4%	8%	10%
22	6%	2%	4%	4%	2%	5%	6%
23	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
24	6%	2%	3%	3%	2%	4%	6%
25	6%	3%	3%	3%	3%	4%	6%
26	7%	3%	5%	5%	3%	7%	8%
27	15%	6%	10%	10%	6%	13%	15%
28	11%	5%	7%	7%	5%	9%	11%
29	7%	3%	4%	4%	3%	6%	8%
30	6%	2%	3%	3%	2%	5%	6%
31	9%	4%	5%	5%	4%	7%	9%
32	4%	2%	2%	2%	2%	3%	4%
33	5%	2%	3%	3%	2%	4%	6%
34	5%	2%	3%	3%	2%	4%	5%
35	7%	3%	4%	4%	3%	5%	7%
36	8%	3%	5%	5%	3%	6%	8%
37	7%	3%	4%	4%	3%	5%	7%
38	10%	4%	6%	6%	4%	8%	10%
39	13%	5%	9%	9%	5%	13%	13%
40	11%	5%	7%	7%	5%	10%	12%
41	10%	5%	6%	6%	5%	8%	11%
42	6%	3%	3%	3%	3%	4%	6%
43	13%	5%	8%	8%	5%	10%	13%
44	6%	3%	4%	4%	3%	5%	6%
45	10%	4%	6%	6%	4%	8%	11%
46	11%	5%	7%	7%	5%	10%	12%
47	26%	11%	17%	17%	11%	23%	27%
48	9%	4%	6%	6%	4%	7%	10%
49	17%	7%	12%	12%	7%	17%	17%
50	8%	4%	5%	5%	4%	6%	8%
51	10%	4%	6%	6%	4%	8%	10%

## Annexe B : Modélisation de l'efficacité

52	16%	7%	10%	10%	7%	13%	17%
53	14%	6%	9%	9%	6%	12%	14%
54	10%	4%	6%	6%	4%	8%	10%
55	14%	6%	8%	8%	6%	11%	14%
56	13%	6%	7%	7%	6%	10%	13%
57	32%	15%	22%	21%	15%	28%	34%
58	25%	11%	16%	16%	11%	21%	26%
59	30%	13%	21%	21%	13%	28%	31%
60	35%	16%	23%	23%	16%	29%	37%
61	78%	44%	63%	63%	44%	77%	79%
62	74%	42%	59%	59%	42%	73%	76%

---

# RESUME DE LA THESE

## **Etude et développement de nouveaux médias fibreux : application à la filtration des aérosols**

Mots-clés : filtration, nontissé, fibres submicroniques, meltblown, spunbond, fibres îles-en-mer

L'objectif de la thèse est l'étude et le développement de médias fibreux avec des fibres ultrafines à travers l'utilisation de la technologie nano-meltblown ainsi que de l'utilisation de fibres bicomposantes îles-en-mer. Cette approche implique un double travail, à la fois sur l'obtention de fibres ultrafines et sur l'homogénéité des médias fibreux. En effet, pour chaque technologie, l'élaboration d'un média fibreux induit une certaine hétérogénéité. L'origine de cette hétérogénéité est multiple : distribution des diamètres des filaments, variation locale de l'épaisseur, de compacité ou de la masse de fibres. Ce qui nous a conduit à mener, en parallèle des travaux d'élaboration de médias, une étude et une modélisation des performances de filtration afin de mieux comprendre l'impact des fibres ultrafines et de l'hétérogénéité des médias fibreux en filtration de l'air. La majorité des modèles de filtration (perméabilité et efficacité) considèrent, en effet, un média fibreux idéal avec des fibres monodisperses et une répartition de matière homogène au sein du média fibreux. Or, en réalité, ces conditions sont rarement réunies, ainsi comprendre l'influence des différentes hétérogénéités sur les performances de filtration peut s'avérer un enjeu important pour améliorer les performances des médias filtrants. La modélisation de cette hétérogénéité se fonde sur la correction des modèles d'efficacité de la littérature à partir des données expérimentales.

## **Study and development of new fibrous medias : application to aerosol filtration**

Keywords: filtration, nonwoven, submicron fiber, meltblown, spunbond, islands-in-the sea fiber

The goal of the thesis is the study and development of fibrous media with ultrafine fibers through the use of nano-meltblown technology as well as the use of bicomponent islands-in-sea fibers. This approach involves dual work, both on obtaining ultrafine fibers and on the homogeneity of fibrous media. Indeed, for each technology, the elaboration of a fibrous media induces heterogeneities. The origin of this heterogeneity is multiple: distribution of filament diameters, local variation in thickness, packing density or basis weight. This led us to carry out a study and a modeling of the filtration performance in order to better understand the impact of ultrafine fibers and the heterogeneity of fibrous media in air filtration. Most of filtration models (permeability and efficiency) consider an ideal fibrous media with monodisperse fibers and a homogeneous distribution of matter within the fibrous media. In reality, these conditions are rarely met, so understanding the influence of different heterogeneities on filtration performance can be an important issue to improve the performance of filtering media. The modeling of this heterogeneity is based on the correction of the models of effectiveness of the literature from the experimental data.