



N°d'ordre NNT : 2019LYSEM029

THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON
opérée au sein de
l'Ecole des Mines de Saint-Etienne

Ecole Doctorale N° 488
Sciences, Ingénierie, Santé

Spécialité de doctorat : Génie des procédés

Soutenue publiquement le 25/11/2019, par :
Adrien Reynaud

**Compréhension et modélisation des
mécanismes de captation des aérosols
par couplage des phénomènes
aérodynamiques et électriques**

Devant le jury composé de :

Yon, Jérôme	Maître de conférence, INSA CORIA Rouen	Rapporteur
Ferry, Daniel	Chargé de recherche, CINaM Marseille	Rapporteur
Doussin, Jean-François	Professeur, LISA-UPEC Créteil	Examineur
Iojoiu, Eduard	Ingénieur motoriste, Volvo GTT	Invité
Dufour, Isabelle	Professeure, Université de Bordeaux	Présidente du jury
Leblanc, Mickaël	Ingénieur motoriste, IFPEN	Invité
Breuil, Philippe	Ingénieur de recherche, EMSE	Invité
Viricelle, Jean-Paul	Directeur de recherche, EMSE	Directeur de thèse
Zinola, Stéphane	Ingénieur motoriste, IFPEN	Encadrant

Spécialités doctorales
 SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX
 MECANIQUE ET INGENIERIE
 GENIE DES PROCEDES
 SCIENCES DE LA TERRE
 SCIENCES ET GENIE DE L'ENVIRONNEMENT

Responsables :
 K. Wolski Directeur de recherche
 S. Drapier, professeur
 F. Gruy, Maître de recherche
 B. Guy, Directeur de recherche
 D. Graillot, Directeur de recherche

Spécialités doctorales
 MATHEMATIQUES APPLIQUEES
 INFORMATIQUE
 SCIENCES DES IMAGES ET DES FORMES
 GENIE INDUSTRIEL
 MICROELECTRONIQUE

Responsables
 O. Roustant, Maître-assistant
 O. Boissier, Professeur
 JC. Pinoli, Professeur
 N. Absi, Maître de recherche
 Ph. Lalevée, Professeur

EMSE : Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat (titulaires d'un doctorat d'État ou d'une HDR)

ABSI	Nabil	MR	Génie industriel	CMP
AUGUSTO	Vincent	CR	Image, Vision, Signal	CIS
AVRIL	Stéphane	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
BADEL	Pierre	MA(MDC)	Mécanique et ingénierie	CIS
BALBO	Flavien	PR2	Informatique	FAYOL
BASSEREAU	Jean-François	PR	Sciences et génie des matériaux	SMS
BATTON-HUBERT	Mireille	PR2	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BEIGBEDER	Michel	MA(MDC)	Informatique	FAYOL
BLAYAC	Sylvain	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
BOISSIER	Olivier	PR1	Informatique	FAYOL
BONNEFOY	Olivier	PR	Génie des Procédés	SPIN
BORBELY	Andras	MR(DR2)	Sciences et génie des matériaux	SMS
BOUCHER	Xavier	PR2	Génie Industriel	FAYOL
BRODHAG	Christian	DR	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BRUCHON	Julien	MA(MDC)	Mécanique et ingénierie	SMS
CAMEIRAO	Ana	MA(MDC)	Génie des Procédés	SPIN
CHRISTIAN	Frédéric	PR	Science et génie des matériaux	SMS
DAUZERE-PERES	Stéphane	PR1	Génie Industriel	CMP
DEBAYLE	Johan	MR	Sciences des Images et des Formes	SPIN
DEGEORGE	Jean-Michel	MA(MDC)	Génie industriel	FAYOL
DELAFOSSE	David	PR0	Sciences et génie des matériaux	SMS
DELORME	Xavier	MA(MDC)	Génie industriel	FAYOL
DESRAYAUD	Christophe	PR1	Mécanique et ingénierie	SMS
DJENIZIAN	Thierry	PR	Science et génie des matériaux	CMP
BERGER-DOUCE	Sandrine	PR1	Sciences de gestion	FAYOL
DRAPIER	Sylvain	PR1	Mécanique et ingénierie	SMS
DUTERTRE	Jean-Max	MA(MDC)		CMP
EL MRABET	Nadia	MA(MDC)		CMP
FAUCHEU	Jenny	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	SMS
FAVERGEON	Loïc	CR	Génie des Procédés	SPIN
FEILLET	Dominique	PR1	Génie Industriel	CMP
FOREST	Valérie	MA(MDC)	Génie des Procédés	CIS
FRACZKIEWICZ	Anna	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GARCIA	Daniel	MR(DR2)	Sciences de la Terre	SPIN
GAVET	Yann	MA(MDC)	Sciences des Images et des Formes	SPIN
GERINGER	Jean	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	CIS
GOEURIOT	Dominique	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GONDRAN	Natacha	MA(MDC)	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
GONZALEZ FELIU	Jesus	MA(MDC)	Sciences économiques	FAYOL
GRAILLOT	Didier	DR	Sciences et génie de l'environnement	SPIN
GROSSEAU	Philippe	DR	Génie des Procédés	SPIN
GRUY	Frédéric	PR1	Génie des Procédés	SPIN
HAN	Woo-Suck	MR	Mécanique et ingénierie	SMS
HERRI	Jean Michel	PR1	Génie des Procédés	SPIN
KERMOUCHE	Guillaume	PR2	Mécanique et Ingénierie	SMS
KLOCKER	Helmut	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
LAFORREST	Valérie	MR(DR2)	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
LERICHE	Rodolphe	CR	Mécanique et ingénierie	FAYOL
MALLIARAS	Georges	PR1	Microélectronique	CMP
MOLIMARD	Jérôme	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
MOUTTE	Jacques	CR	Génie des Procédés	SPIN
NAVARRO	Laurent	CR		CIS
NEUBERT	Gilles			FAYOL
NIKOLOVSKI	Jean-Pierre	Ingénieur de recherche	Mécanique et ingénierie	CMP
NORTIER	Patrice	PR1	Génie des Procédés	SPIN
O CONNOR	Rodney Philip	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
PICARD	Gauthier	MA(MDC)	Informatique	FAYOL
PINOLI	Jean Charles	PR0	Sciences des Images et des Formes	SPIN
POURCHEZ	Jérémy	MR	Génie des Procédés	CIS
ROUSSY	Agnès	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
ROUSTANT	Olivier	MA(MDC)	Mathématiques appliquées	FAYOL
SANAUR	Sébastien	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
SERRIS	Eric	IRD		FAYOL
STOLARZ	Jacques	CR	Sciences et génie des matériaux	SMS
TRIA	Assia	Ingénieur de recherche	Microélectronique	CMP
VALDIVIESO	François	PR2	Sciences et génie des matériaux	SMS
VIRICELLE	Jean Paul	DR	Génie des Procédés	SPIN
WOLSKI	Krzysztof	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
XIE	Xiaolan	PR0	Génie industriel	CIS
YUGMA	Gallian	CR	Génie industriel	CMP



Thèse de doctorat de l'université de Lyon préparée à l'IFP
Energies Nouvelles et à l'École des Mines de Saint-Etienne

École doctorale n° 488

Sciences Ingénierie Santé

Spécialité génie des procédés

Soutenue publiquement le 25/11/2019 par

Adrien Reynaud

Compréhension et modélisation des mécanismes de
captation des aérosols par couplage des phénomènes
aérodynamiques et électriques

Composition du jury

M. YON, Jérôme	Maître de conférence, CORIA INSA Rouen	Rapporteur
M. FERRY, Daniel	Chargé de recherche CNRS, CINA M Marseille	Rapporteur
M. DOUSSIN, Jean-François	Professeur, LISA-UPEC, Créteil	Examineur
M. IOJOIU, Eduard	Ingénieur motoriste, Volvo GTT	Invité
Mme. DUFOUR, Isabelle	Professeure, IMS Université de Bordeaux	Présidente du jury
M. LEBLANC, Mickael	Ingénieur motoriste, IFPEN	Invité
M. BREUIL, Philippe	Ingénieur de recherche, EMSE	Invité
M. VIRICELLE, Jean-Paul	Directeur de recherche, EMSE	Directeur de thèse
M. ZINOLA, Stéphane	Ingénieur motoriste, IFPEN	Encadrant

Remerciements

Je souhaite en premier lieu témoigner ma reconnaissance auprès des membres de mon jury. Je remercie Isabelle Dufour, pour avoir accepté de le présider mais également pour ses observations et les questions pertinentes qui ont suivi la soutenance. Je tiens également à remercier Daniel Ferry et Jérôme Yon pour avoir pris le temps de rapporter le présent manuscrit. Je vous remercie tous deux pour vos commentaires sur ce travail, mais aussi pour les échanges passionnants à l'issue de la soutenance. Vos questions et vos remarques ont été inspirantes et sont précieuses pour la poursuite de nos travaux de recherche. Mes remerciements vont aussi à Jean-François Doussin. Je vous remercie pour l'intérêt que vous avez montré pour ce travail en acceptant d'en être l'examineur et pour vos questions pertinentes. Enfin, je souhaite adresser mes remerciements à Eduard Iojoiu pour les questions particulièrement intéressantes relatives au développement technologique des capteurs de suie.

Je souhaite adresser tous mes remerciements à mes encadrants qui ont tous fait de cette thèse une expérience à la fois enrichissante et agréable. Du côté de l'École des Mines de Saint-Étienne, je tiens à adresser toute ma gratitude à Jean-Paul Viricelle pour avoir dirigé mon tout premier travail de recherche. Je te remercie de m'avoir accueilli dans ton équipe, pour tous tes conseils mais aussi pour ta constante bienveillance. Ceci à largement contribué à faire de ma thèse une expérience agréable. Je remercie aussi Philippe Breuil, pour son aide plus qu'indispensable sur le banc suie et pour ses multiples conseils (en particulier pour les statistiques, l'électronique, les capteurs...). J'ai beaucoup apprécié nos discussions, qui m'ont toujours inspirées et m'ont aidé à maintenir le cap.

Du côté de IFP Énergies Nouvelles, je remercie tout d'abord Stéphane Zinola, pour avoir encadré ce travail avec toujours beaucoup de motivation et d'entrain. Nos échanges ont toujours été une source de motivation. Je te remercie aussi pour tous tes conseils et pour l'autonomie que tu m'as donné. J'ai énormément appris durant ces trois ans. Je te remercie également pour la confiance que tu as placée en moi en me confiant deux brillants stagiaires. Je tiens également à remercier Mickaël Leblanc pour ses innombrables préconisations sur la mesure des particules de suie qui m'ont été d'une aide précieuse pour la partie expérimentale de ce travail. Je souhaiterais aussi remercier Stéphane Raux, qui a été actif dans ce projet du début à la fin et qui a toujours été d'excellent conseil.

Je remercie également mes collègues stéphanois du centre SPIN des Mines de Saint-Étienne pour son accueil lors de mes périodes de manip. Merci à Loïc Favergeon pour m'avoir accueilli dans son équipe. Je voudrais en particulier adresser mes remerciements à Maxime, pour son aide précieuse pendant les séances de nettoyage

du Pegasor, mais surtout pour son enthousiasme et ses jeux de mots à base de rhoues (roux ?). Je remercie également Mathilde pour sa gentillesse et sa bonne humeur. Merci aussi à Riadh pour les discussions passionnantes autour des suies et des capteurs. Merci à Richard pour son aide précieuse sur la partie mécanique du banc. Enfin, je remercie Sylvain pour ses conseils toujours pertinents en simulation, et en particulier pour son aide pour la LBM.

Ces années de thèse n'auraient pas été les mêmes sans mes co-bureaux thésards. Je te remercie Gita pour ton enthousiasme, partager le bureau avec toi a été un vrai plaisir. Merci aussi d'avoir eu la patience de m'apprendre quelques rudiments du persan, le tableau du bureau s'en souvient encore. Merci à Thomas pour sa constante bonne humeur. Enfin, je tiens à remercier Maëlig, Laëtitia, Roland, Thang, Marie-Claude, Xavier, Mathilde, João, Solmaz et tous les participants des rituelles pauses café pour leur accueil chaleureux.

A Solaize, je remercie tout le département R105 pour m'avoir accueilli pendant trois ans. Merci à Matthieu Lecompte, Arnaud Frobert, David Berthout et Christophe Pichon, les réguliers des points thèse. Merci aussi à Stéphane V., Thierry, Hélène, Jean-Marc. Je remercie aussi Christian Angelberger, Jean-Lou Pierson, Guillaume Vinay, Julien Bohbot, Philippe Béard, Rim Brahem, Isabelle Faille, Valérie Sauvant-Moynot, Rémy Mingant pour leurs précieux conseils. Enfin, je remercie Didier Grondin, mon double collègue et prédécesseur sur le banc suie, dont la thèse a toujours été à portée de main. J'ai beaucoup apprécié de partager ton expérience du capteur et de la thèse, et ces discussions me manqueront. J'espère avoir l'occasion de retravailler avec toi dans le futur.

Je remercie Rafael et Bastian, les deux stagiaires que j'ai eu la chance d'encadrer. Merci Rafael pour le superbe travail que tu as réalisé, tu devrais trouver le résultat de certaines de tes études dans les pages qui suivent. Merci encore pour ton implication dans ce projet. Merci à toi Bastian, pour le sérieux et la motivation dont tu as fait preuve. Travailler avec toi a été un réel plaisir. Le fruit de ce travail est aussi le tiens tant tu as contribué au développement du code de calcul.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à mes co-bureaux exceptionnels, sans qui ce passage à IFPEN n'aurait pas eu la même saveur. Je remercie Mafalda, pour m'avoir inclus à ses pauses dessin. J'espère que tu peins toujours autant. Merci à Laetitia pour sa présence énergique, pour m'avoir nourri de chocolat et pour toutes ces fameuses discussions philosophiques. Merci à Eric pour toutes les pauses discussions (philosophiques aussi ?). Merci à Katia, qui a largement participé à l'excellente ambiance du bureau au cours des derniers mois.

Merci à mes collègues thésards (et assimilés) Angélique, Ana Teresa, Damien, Maxime, Alexandre, Charlie, Carole, Alexis, Audrey, Thibault, Julie, Johan, David, Federico, Maroua, Lauriane, Bassel, Alexandre, Elsy, Charlotte, Sophie, Wei pour les « discussions du vendredi » (parfois avancées... au lundi). Ces repas vont me manquer (le royal de Fred aussi).

Je remercie également mes amis qui m'ont permis de conserver mon enthousiasme, mois après mois. En particulier, merci à Luna pour ton amitié et ton aide précieuse pour la préparation du pot !

Par ces quelques lignes je tiens tout particulièrement à exprimer ma reconnais-

sance à ma famille. Si je suis arrivé au terme de cette expérience, c'est aussi grâce à votre soutien et à votre amour. Merci à mon père Emmanuel, qui a toujours veillé à ce que je mange à ma faim. Merci à ma mère Mireille, pour son optimisme et sa confiance dans mes choix. Merci à ma soeur Camille, pour son soutien en toutes circonstances. Je remercie aussi mes grand-parents Elyette, Gabrielle, Fabio et Pierre pour leurs précieux encouragements. Pour ces quelques raisons et toutes les autres je vous dédie ce travail.

Last but not least, merci à toi Aurélie. Chaque instant passé avec toi a été inestimable pour moi. A la suite de nos aventures !

Résumé

Les particules ultrafines émises par les moteurs thermiques ont un impact grave sur la santé. Depuis la norme Euro 3, la réglementation EOBD impose aux véhicules d'auto-diagnostiquer leurs propres organes de dépollution. Depuis la norme Euro 6b, le nombre de particules émises par les moteurs Diesel et essence est réglementé. Les capteurs résistifs permettent d'estimer le dépassement de seuil en concentration massique d'un aérosol de suie. Les suies se déposent entre les électrodes du capteur, créant des microstructures semblables à des ponts dont la résistance est mesurée. Leur robustesse et leur faible coût de fabrication en font de bons candidats pour le diagnostic embarqué des filtres à particules mais la concentration en nombre de particules n'est pas encore accessible.

L'objectif de ce travail est d'étudier les mécanismes de captation conduisant à la formation des microstructures de suie. Dans une approche expérimentale, les particules de suie ont été classifiées en fonction de leur taille grâce à deux techniques différentes : la classification électrostatique et la classification aérodynamique. Cela a permis d'étudier le comportement du capteur soumis à des particules entre 60 et 150 nm.

Enfin, un modèle de compréhension simule la construction des microstructures de suie. Les trajectoires des particules sont calculées et la modélisation de leur dépôt sur les électrodes est couplée avec le calcul des champs électrique et la dynamique des fluides. Cette méthode s'inspire d'un modèle de la littérature et l'enrichit d'un mécanisme appelé diélectrophorèse, expliquant mieux la formation des microstructures. L'influence de la taille des particules a été étudiée pour expliquer les tendances observées expérimentalement.

Abstract

Ultrafine soot particle emissions from thermal engines have harmful health effects. Since Euro 3 standard, EOBD regulation obliges vehicles to perform the on-board diagnostic of their own aftertreatment system. Since Euro 6b standard, the particle number (PN) emitted from Diesel and gasoline engines is regulated. Resistive sensors evaluate a particulate matter (PM) of soot threshold exceedance. The nanoparticles are collected between interdigitated electrodes, building bridge-like micro-structures of which. Although their robustness and their low production cost make the resistive soot sensor a good candidate for the Diesel particulate filter diagnosis, the current understanding does not allow to access PN.

The objective of this work is to study the deposit mechanisms leading to the soot micro-structures. Particles have been classified according to their diameters in an experimental approach thanks to two different techniques : the electrostatic classification and the aerodynamic classification. Those methods allow the study the sensor behaviour to monodisperse aerosol between 60 and 150 nm.

Finally, a model for understanding the soot micro-structures construction have been developed. Soot particles are tracked until their deposit on the electrodes, which is coupled with the electric and aerodynamic fields computation. This approach is inspired by a model from the literature and is extended by a mechanism called dielectrophoresis, which provides a better understanding of the micro-structures construction. The influence of particle size was studied to explain trends observed experimentally.

Table des matières

Résumé	IV
Abstract	V
Table des figures	IX
Liste des symboles	XIV
Introduction	1
1 État de l'art	1
1.1 Contexte sanitaire	2
1.2 Technologies de captation	7
1.3 Capteurs résistifs.....	13
1.4 Mécanismes de formation de la suie.....	18
1.5 Propriétés physico-chimiques de la suie.....	24
1.6 Dynamique et captation des nano-particules.....	31
1.7 Synthèse bibliographique.....	44
2 Matériel et méthodes	47
2.1 Objectifs et stratégie de l'étude expérimentale.....	48
2.2 Présentation générale du moyen d'essai.....	48
2.3 Génération d'un aérosol de suie.....	50
2.4 Diluteur VKL Palas.....	53
2.5 Analyseurs.....	54
2.6 Pertes de particules.....	61
2.7 Le capteur de suie.....	62
2.8 Protocole expérimental.....	66

2.9	Conclusion sur les dispositifs expérimentaux.....	67
3	Réponse d'un capteur à un aérosol monodisperse	69
3.1	Introduction et objectifs.....	70
3.2	Réponse sous aérosol polydisperse	70
3.3	Classification électrostatique.....	75
3.4	Oxydation des suies à la surface du capteur.....	87
3.5	Classification aérodynamique.....	90
3.6	Conclusion sur la classification des aérosols.....	95
4	Simulation de la captation des particules de suies	97
4.1	Méthodologie.....	98
4.2	Champ de vitesses à l'échelle du capteur.....	100
4.3	Champ de vitesses à l'échelle des électrodes.....	104
4.4	Champ et forces électriques.....	110
4.5	Approche lagrangienne	114
4.6	Analyse cinématique	122
4.7	Croissance des dendrites.....	132
4.8	Facteur de forme des particules de suie.....	142
4.9	Electrorotation.....	148
4.10	Conclusion	152
	Conclusion	154
	Bibliographie	158
	Annexe A Matrice des essais	170
	Annexe B Observation de la charge des électrodes	172
	Annexe C Images par microscopie MEB	174
	Annexe D Détection des sauts	176
	Annexe E Validation des méthodes numériques	179
E.1	Validation de la méthode LBM.....	179
E.2	Validation de la méthode d'Euler	179
E.3	Validation de l'algorithme de Verlet.....	182

Annexe F	Résumé des paramètres	183
Annexe G	Génération numérique d'agrégats	184
Annexe H	Méthodes numériques pour l'étude aérodynamique des agrégats fractals	187
H.1	Maillage.....	187
H.2	Solveur.....	188
Annexe I	Electrorotation	191
I.1	Modèle analytique.....	191
I.2	Implémentation.....	192
Annexe J	Modèle d'oxydation	195
J.1	Bilan thermique et modèle de cinétique chimique.....	195
J.2	Méthode numérique.....	196
J.3	Étude des différents modèles.....	199

Table des figures

1.1	Dépôt des particules dans les voies respiratoires en fonction de leur taille [5]	2
1.2	Système de post-traitement des gaz d'échappement pour un moteur Diesel	5
1.3	Principe de collecte de deux types de filtres [12]	6
1.4	Deux principaux modèles d'électrofiltres [15]	8
1.5	Schéma de principe du capteur EmiSense	10
1.6	Brevets de capteurs résistifs	11
1.7	Brevets de capteurs résistifs	11
1.8	Principe d'un résonateur MEMS à microlevier, d'après [26].	12
1.9	Schéma du capteur EFI Automotive	13
1.10	Cycle de fonctionnement d'un capteur résistif	14
1.11	Nez de capteur étudiés dans l'étude CICLAMEN 2	15
1.12	Transport de particules au voisinage du capteur	15
1.13	Réponse du capteur EFI Automotive pour différentes polarisations, d'après [8]	16
1.14	Construction de dendrites par le modèle de Teike <i>et al.</i> [35].	17
1.15	Vueschématique de la formation des suies (flamme pré-mixée) [38].	19
1.16	Morphologie d'une particule primaire de suie (sphérule) [39].	19
1.17	Distribution granulométrique des particules issues des combustions Diesel [10].	20
1.18	Particules de dimensions fractales différentes	22
1.19	Utilisation de la loi d'échelle pour la détermination des paramètres fractals	23
1.20	Structure typique d'une particule de suie automobile [2].	24
1.21	Exemple de composition des particules émises par un moteur Diesel	25
1.22	Distribution de Boltzmann en fonction du diamètre de mobilité	29

1.23	Mesures TDMA pour un aérosol de suies Diesel [69].....	30
1.24	Evolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre des particules, d'après [74]	32
1.25	Rapport $\frac{d_a}{d_{ve}}$ en fonction du régime de l'écoulement [77].....	34
1.26	Le cas du dipôle	38
1.27	Particule soumise à un gradient de température.....	41
1.28	Interactions particule-molécules.....	42
2.1	Schéma général du banc d'essai	49
2.2	Schéma de principe du mini CAST.....	51
2.3	Granulométries à différents pas de temps après allumage du mini-CAST. . .	51
2.4	Granulométries de différents points de fonctionnement du mini-CAST mesurées avec un EEPS (<i>Engine Exhaust Particle Sizer</i> , TSI) [30]. . .	53
2.5	Schéma du VKL.....	54
2.6	Distribution de Boltzmann en fonction du diamètre de mobilité . . .	55
2.7	Schéma simplifié d'une colonne DMA.....	56
2.8	Mobilité électrique en fonction du diamètre de mobilité.....	56
2.9	Illustration du principe de la mesure effectuée par un SMPS.....	57
2.10	Schéma simplifié d'un AAC.....	58
2.11	Granulométrie du PF4 mesurée avec un AAC.....	59
2.12	Illustration du principe de la mesure effectuée par un AAC.....	59
2.13	Schéma d'un CPC	60
2.14	Schéma de principe d'un instrument Pegasor [17].....	61
2.15	Taux de pénétration des particules par taille.....	62
2.16	Schéma du capteur et de sa chambre.....	63
2.17	Schéma électrique complet du circuit pour l'enregistrement du signal du capteur, d'après [8].....	64
2.18	Protocole expérimental.....	66
3.1	Vue d'ensemble des enjeux et des moyens pour l'approche expérimentale	70
3.2	Impact de la tension de polarisation sur le signal du capteur en sortie mini-CAST	71
3.3	Temps pour atteindre la conductance $1 \mu S$ en fonction de la tension de polarisation.....	72
3.4	Réponses pour différentes orientations du capteur et fréquences de polarisation.....	73
3.5	Phénoménologie du dépôt sous polarisation alternative.....	74

3.6	Phénoménologie de la captation	75
3.7	Comparaison des réponses à « haute » et basse concentration.....	76
3.8	Vue d'ensemble des signaux par diamètre de mobilité	77
3.9	Temps de percolation en fonction de la tension de polarisation.....	78
3.10	Influence du signe de la tension.....	79
3.11	Réponses pour des polarisations continues et alternatives.....	80
3.12	Temps de percolation en fonction du diamètre de mobilité	81
3.13	Modèle de $t_{perc} = f(C, d_m)$ le plus probable.....	83
3.14	Dépôt d'un aérosol monodisperse et mono-chargé sur les électrodes du capteur résistif	85
3.15	Exemples de ponts reliant les électrodes du capteur.....	86
3.16	Construction de pont par électrophorèse et diélectrophorèse	86
3.17	Modélisation d'un pont de suie.....	88
3.18	Rayon et température du cylindre soumis à l'oxydation.....	89
3.19	Modélisation de la décroissance du signal.....	90
3.20	Réponse d'un capteur à un aérosol classifié par un AAC.....	91
3.21	Dérivées des signaux.....	92
3.22	Probabilités des sauts de conductance pour deux diamètres aérody- namiques	94
4.1	Approche multiphysique pour le calcul en dynamique des fluides com- putationnelle.....	99
4.2	Algorithme simplifié du modèle de captation.....	100
4.3	Conditions aux limites, dimensions et maillage pour le calcul du champ stationnaire de vitesse à l'échelle du capteur.....	101
4.4	Champ de vitesse (norme) dans la chambre du capteur calculé dans des conditions proches de l'expérience	102
4.5	Coutours de la vitesse dans le plan situé $100 \mu m$ au-dessus de la surface du capteur.....	103
4.6	Profils de vitesses au voisinage de l'élément sensible.	104
4.7	Discrétisation des vitesses dans le schéma D2Q9.....	106
4.8	Domaine de calcul et conditions aux limites utilisés pour les calculs du champ de vitesse.....	108
4.9	Composantes du champ de vitesse au voisinage des électrodes.....	109
4.10	Conditions aux limites et domaine de calcul utilisés pour les calculs d'électrostatique.	111
4.11	Champ électrique au voisinage des électrodes	112

4.12	Comparaison de la force de Coulomb et de la force de diélectrophorèse pour différents diamètres	113
4.13	Comparaison de la DEP et de la force de Coulomb.	114
4.14	Partie réelle du facteur de Clausius-Mossotti pour différentes conductivités électrique de la particule.	116
4.15	Méthode d'Euler pour différentes valeurs du facteur de forme χ [130]	120
4.16	Illustration du maillage de collision	121
4.17	Impact de la diffusion	122
4.18	Impact de la charge électrique	123
4.19	Impact du facteur de forme	124
4.20	Impact de la taille	125
4.21	Impact de la taille	125
4.22	Impact de la fréquence et de la taille	127
4.23	Schéma illustrant la hauteur de captation	127
4.24	Hauteur de captation	128
4.25	Probabilité cumulée du dépôt	130
4.26	Histogrammes de dépôt pour différents diamètres de particules	131
4.27	Temps de dépôt en fonction du diamètre	132
4.28	Exemple de dendrite simulé par le modèle de dépôt	134
4.29	Impact de la diélectrophorèse et du couplage pour $d_p = 100 \text{ nm}$	136
4.30	Impact de la diélectrophorèse pour $d_p = 500 \text{ nm}$ et deux tensions différentes	138
4.31	Impact du diamètre sur l'évolution de la distance entre deux dendrites	139
4.32	Impact de la tension de polarisation sur l'évolution de la distance entre deux dendrites	140
4.33	Logigramme pour le calcul du facteur de forme	143
4.34	Conditions aux limites pour les calculs CFD	144
4.35	Lignes de courant et tracé de la pression sur un agrégat ($D_f = 1.8$ et $N_{pp} = 30$ [131])	145
4.36	Traînée pour différentes particules de $N_{pp} = 10$ sphérules sous différents angles d'attaque [131]	146
4.37	Facteur de forme [131]	147
4.38	Electrorotation d'un ellipsoïde	149
4.39	Rotation d'une particule de suie dans le modèle de Welland <i>et al.</i>	151
A.1	Concentration par diamètre de mobilité.	171

B.1	Vue globale du capteur.....	172
B.2	Observation de la périodicité du dépôt grâce à une loupe.....	173
C.1	Clichés MEB	174
C.2	Clichés MEB	175
D.1	Illustration de la détection des sauts.....	177
E.1	Comparaison des profils de vitesse pour deux méthodes numériques .	180
E.2	Conditions aux limites pour le calcul des champs	180
E.3	Comparaison du suivi lagrangien de cette étude avec celui opéré par Fluent.	181
E.4	Comparaison de la méthode d'Euler et de l'algorithme de Verlet [130]	182
G.1	Echantillon de particules générées avec Aglogen.....	186
H.1	Maillage d'un agrégat de suie [131].....	188
H.2	Illustration des critères de qualité d'un bon maillage.....	188
H.3	Histogramme du paramètre <i>skewness</i> pour un maillage type.....	189
H.4	Histogramme du paramètre qualité orthogonale pour un maillage type	189
J.1	Algorithme utilisé.....	197
J.2	Algorithme pour les calculs incluant l'oxydation.....	198
J.3	Algorithme du modèle à deux pas de temps et à deux suies.....	199
J.4	Transferts thermiques et effet joule en fonction du temps et de la dimension d'espace	200
J.5	Puissance d'oxydation.....	201
J.6	Propriétés du cylindre dans le modèle 2T.....	201
J.7	Conductance calculée par le modèle d'oxydation.....	202
J.8	Rayon et température pour le modèle 2T2R.....	202
J.9	Modélisation de la décroissance du signal.....	203

Liste des symboles

Caractères latins

E	Champ électrique
F_C	Force de Coulomb
F_{DEP}	Force diélectrophorétique
F_{drag}	Traînée aérodynamique
F_L	Force de Langevin
F_{th}	Force thermophorétique
μ	Moment dipolaire
v	Vitesse du fluide
v_p	Vitesse des particules
v_r	Vitesse relative
f_{CM}	Facteur de Clausius-Mossotti
C	Concentration en nombre
C_c	Coefficient de correction de Cunningham
C_{el}	Capacité des électrodes
C_p	Capacité calorifique
c_{therm}	Vitesse thermique
D	Coefficient de Stokes-Einstein
d_a	Diamètre aérodynamique
d_m	Diamètre de mobilité
d_p	Diamètre d'une particule
D_f	Dimension fractale
d_{ie}	Distance inter-électrode
d_{pp}	Diamètre des sphérules
d_{ve}	Diamètre de volume équivalent
dX_{coll}	Paramètre du maillage de collision
e	Charge électrique élémentaire
f_c	Fréquence de coupure

G	Conductance électrique
h_{capt}	Hauteur de captation
h_{elec}	Hauteur des électrodes
k_b	Constante de Boltzmann
K_{dep}	Paramètre de dépôt
K_{dep}	Seuil de dépôt pour une maille
k_f	Pré-facteur fractal
K_{th}	Coefficient thermophorétique
Kn	Nombre de Knudsen
L_x	Largeur de domaine de calcul
L_y	Hauteur de domaine de calcul
n	Nombre de charges électriques
N_n	Particules portant n charges e
N_{pp}	Nombre de particules primaires
N_t	Nombre d'itérations
q	Charge électrique
R_g	Rayon de giration
Re	Nombre de Reynolds
Stk	Nombre de Stokes
t_{dep}	Temps de dépôt
t_{perc}	Temps de percolation
u_{cis}	Vitesse de cisaillement
V	Potentiel électrique
V_{pol}	Tension de polarisation
Z_p	Mobilité électrique

Caractères grecs

x	Facteur de forme dynamique
x_c	Facteur de forme dynamique continu
x_t	Facteur de forme dynamique transitoire
Δt	Pas de temps
Δx	Paramètre de maille
η_f	Viscosité dynamique de l'air
λ	Libre parcours moyen des molécules
ν_f	Viscosité cinématique de l'air
ρ	Masse volumique
ρ_0	Masse volumique de l'eau
ρ_e	Résistivité électrique
ρ_{eff}	Masse volumique effective
σ	Conductivité électrique

ϵ Permittivité relative

ϵ_0 Permittivité du vide

Abbreviations

AAC *Aerodynamic Aerosol Classifier*

CPC *Condensation particle counter*

DEP Diélectrophorèse

DMA *Differential Mobility Analyzer*

DOC *Diesel oxydation catalyst*

EP Électrophorèse

FAP *Filtre à particules*

HAP Hydrocarbure aromatique polycyclique

MEB Microscope électronique à balayage

OBD *On-board diagnostic*

PF Point de fonctionnement

PM *Particulate mass*

PN *Particle number*

PPS *Pegasor particle sensor*

SMPS *Scanning mobility particle sizer*

SOF *Soluble organic fraction*

Introduction

Plus que jamais, la pollution atmosphérique est au centre des préoccupations. Le dérèglement climatique [1] et la dégradation de la qualité de l'air [2] sont les principales conséquences environnementales des émissions anthropiques et sont d'ores et déjà observées. Les émissions de dioxyde de carbone sont souvent présentées comme en étant les principales responsables, mais ce ne sont pas les seules. En effet, parmi les nombreux polluants figurent les particules de suie. L'impact des aérosols de suie sur la santé a fait l'objet de plusieurs études à grande échelle, et la corrélation entre leur concentration (en masse et en nombre) et les maladies respiratoires (asthme, bronchite chronique), voire les cancers ainsi que les problèmes cardiovasculaires et cognitifs, est aujourd'hui démontrée [3, 4, 5]. En effet, la petite taille des particules de suie ($10\text{ nm} - 1\ \mu\text{m}$) leur confère la capacité de pénétrer profondément dans l'arbre respiratoire humain, et d'y déposer les composés chimiques toxiques qui se sont adsorbés à leur surface lors de leur formation. Les particules de suies ont aussi un rôle dans le dérèglement climatique. Une fois relâchées dans l'atmosphère, elles sont susceptibles d'absorber les radiations solaires pouvant conduire à un déséquilibre du bilan radiatif de la planète. Dans un article de la revue scientifique *Nature*, Johannes Quaas [6] souligne cette spécificité des particules constituées de *black carbon*. En absorbant l'énergie du rayonnement solaire, les particules de suie contribueraient au réchauffement de l'atmosphère, ce qui pourrait conduire à la dissolution des masses nuageuses.

Pour limiter les conséquences liées à la présence d'aérosols de suie dans l'atmosphère, l'Union Européenne a mis en place des normes règlementant les émissions de nombreux polluants dans le secteur des transports qui représentaient, en 2014, 19% des émissions de particules inférieures à $10\ \mu\text{m}$. Les normes Euro sont apparues en 1993 et évoluent régulièrement vers des limites d'émission de polluants de plus en plus basses. Si l'émission des aérosols de suie est contrôlée dès 1993, elle ne concerne alors que la masse de particules émise par kilomètre. Ce n'est que plus récemment, en 2011, que la mise à jour Euro 5b intègre le contrôle du nombre de particules émis par kilomètre. Ceci permet de tenir compte des particules ultrafines ($d_p < 100\ \text{nm}$) car ce sont elles qui contribuent le plus au nombre alors que les particules fines ($d_p < 2.5\ \mu\text{m}$) contribuent majoritairement à la masse de l'aérosol. Ces réglementations s'appliquent aux moteurs Diesel comme aux moteurs essence depuis l'entrée en vigueur de la norme Euro 6b en 2014 [7].

Pour répondre à ces exigences légales, les motoristes ont adopté des stratégies de post-traitement pour dépolluer les émissions des moteurs thermiques. Sur les véhicules Diesel, le principal acteur de la dépollution est le filtre à particules (ou

FAP). La filtration du flux échappement est assurée lorsqu'il traverse un monolithe constitué de parois poreuses. Le diagnostic embarqué¹ permet de contrôler s'il y a défaillance du FAP et est, à l'heure actuelle, réalisé par une mesure de la perte de charge grâce à deux capteurs de pression en amont et en aval du FAP. Toutefois, cette méthode ne permet pas de détecter une petite défaillance, conduisant néanmoins à un dépassement des normes d'émission de particules. C'est pour améliorer la détection de la détérioration du FAP que différentes technologies de capteurs de suie sont en cours de développement. Les capteurs se doivent en effet d'être robustes et fiables tout en restant bon marché. Le capteur résistif est l'une des solutions technologiques étudiées. Comme son nom l'indique, son principe physique repose sur la mesure de la résistance des suies déposées entre deux électrodes inter-digitées. Ces dernières sont polarisées en tension continue et facilitent la captation des particules de suie. Cela permet d'estimer le dépassement d'un seuil de concentration massique d'un aérosol. Le dépassement d'un seuil de concentration en nombre n'est pas encore accessible dans l'état actuel des connaissances. Un capteur de suie dans une version semi-industrielle a été développé par EFI Automotive à la suite de deux projets ANR : CICLAMEN 1 et CICLAMEN 2. Ces projets ont associé l'école des Mines de Saint-Étienne, EFI Automotive, Renault Trucks, Céramique Techniques Industrielles (CTI) et IFP Énergies Nouvelles. La thèse de Didier Grondin [8] a fait suite à ces études avec pour objectif de déterminer les principaux paramètres affectant la réponse du capteur, notamment sa tension de polarisation.

Le travail de thèse présenté dans ce mémoire a pour objectif d'apporter de nouveaux éléments de compréhension sur la captation d'un aérosol de suie soumis à des mécanismes aérodynamiques et électriques. Une meilleure connaissance des mécanismes de dépôt pourraient en effet conduire à une exploitation différente du signal, voire au développement de la technologie vers la détection du dépassement d'un seuil de concentration en nombre. Ce mémoire, composé de quatre chapitres, s'attache à exposer les travaux réalisés dans ce contexte.

Le **chapitre 1** propose une étude bibliographique orientée selon trois axes. Le contexte environnemental et plusieurs études épidémiologiques y sont synthétisés et permettent d'appréhender l'impact sanitaire des particules de suie. Plusieurs technologies de captation des aérosols sont présentées, l'accent étant mis sur les procédés mettant en jeu des mécanismes de captation par champ électrique. La technologie du capteur de suie résistif est davantage détaillée et un panorama des travaux de recherche y est exposé. Les mécanismes relatifs aux particules de suie sont présentés, depuis leur formation jusqu'à leur captation. En particulier, les expressions analytiques de plusieurs forces sont retranscrites et utilisées dans le cadre de l'approche numérique de ce travail.

Dans le **chapitre 2** le protocole expérimental est présenté. Grâce à celui-ci, un aérosol polydisperse généré par un brûleur est classifié afin de transmettre un aérosol monodisperse au capteur de suie. La classification a été opérée par deux techniques différentes : une classification électrostatique et une classification aérodynamique. L'objectif de ce chapitre, en plus d'exposer le cadre expérimental de cette étude, est de présenter les avantages et les limites de ces différentes méthodes.

Le **chapitre 3** présente l'influence de la taille des particules sur la réponse du

1. *On-board diagnostic*, abrégé par OBD en anglais.

capteur de suie. Pour accéder à une mesure de la concentration en nombre, il est indispensable que le capteur de suie soit sensible aux particules qui y contribuent le plus ie. $d_p < 100 \text{ nm}$. Des particules dont les diamètres sont compris entre 50 nm et 150 nm ont par conséquent été étudiées. En plus d'avoir montré que le capteur résistif est sensible aux particules ultrafines, une tendance a été dégagée : plus les particules sont fines, plus le temps de réponse du capteur est important. Cette tendance, d'abord observée grâce à une classification électrostatique, a été confirmée par l'emploi d'une classification aérodynamique. Enfin, le capteur a été polarisé avec une tension alternative, ce qui a permis de dégager des hypothèses sur la captation des particules, notamment en ce qui concerne l'équilibre entre les forces électriques et les forces aérodynamiques agissant sur une particule de suie ultrafine.

Enfin, dans le **chapitre 4**, l'approche numérique de ce travail est restituée. Un modèle de compréhension a été développé pour simuler les phénomènes de dépôt des particules sur les électrodes. En particulier, les images en microscopie électronique ont précisé la formation de ponts de particules entre les électrodes. L'objectif premier de cette approche est d'étudier l'influence de la taille des particules sur la vitesse de formation de ces structures à l'échelle des électrodes. Au-delà d'un diamètre seuil dépendant notamment de l'aérodynamique au voisinage des électrodes, il a été montré que la diélectrophorèse est le mécanisme de captation principal. Ce phénomène, peu étudié dans le contexte des capteurs de suie résistifs, explique plusieurs aspects de la construction des ponts de suie et explique mieux les résultats expérimentaux.

Chapitre 1

État de l'art

Les aérosols de suie font l'objet de nombreuses études sur le plan fondamental comme sur le plan technologique. Le secteur du transport compte parmi les premiers émetteurs de particules fines [9]. Après avoir établi l'impact des particules de suie sur l'environnement et sur la santé humaine, un état de l'art des capteurs embarqués et destinés à diagnostiquer les organes de dépollution des véhicules sera fait. Afin de comprendre les différents phénomènes en jeu dans cette étude, il est nécessaire de comprendre les mécanismes de formation des particules de suie ainsi que leurs propriétés physico-chimiques. Enfin, les modèles de dynamique des particules présents dans la littérature seront analysés.

1.1	Contexte sanitaire	2
1.2	Technologies de captation	7
1.3	Capteurs résistifs	13
1.4	Mécanismes de formation de la suie	18
1.5	Propriétés physico-chimiques de la suie	24
1.6	Dynamique et captation des nano-particules	31
1.7	Synthèse bibliographique	44

1.1 Contexte sanitaire

L'activité humaine a un impact sur l'environnement et les moteurs à combustion interne n'y font pas exception. Différents polluants sont émis par ces moteurs et ont un impact sur la santé humaine. Dans le but de limiter la quantité de gaz nocifs et de particules relâchés dans l'atmosphère, des mesures ont été prises, notamment en ce qui concerne les véhicules roulants. Dans ce paragraphe, nous évoquerons l'impact des particules sur la santé ainsi que les normes européennes en vigueur qui visent à limiter les émissions de polluants. Enfin, nous aborderons le fonctionnement des dispositifs de post-traitement pour les véhicules.

1.1.1 Impact sur la santé

Les particules émises par les moteurs à combustion interne ont un impact sur la santé car une fois dans l'atmosphère, elles peuvent être inhalées. Les plus fines d'entre elles atteignent les poumons et sont captées par les tissus. Dans leur rapport, Barbusse *et al.* [2] évoquent les conséquences de l'inhalation des particules. Des effets à court terme peuvent se faire ressentir sur la santé, même lorsque la concentration de particules à laquelle l'individu a été exposé est relativement faible ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$). L'exposition à des concentrations plus élevées peut donner lieu à l'apparition de bronchites chroniques, des difficultés respiratoires, voire de l'asthme. A plus long terme, des effets cardio-vasculaires et cancers des voies respiratoires peuvent apparaître.

Les études les plus marquantes s'intéressent à l'impact de la concentration en particules et de leur classe de taille sur le taux de mortalité. Les classes de tailles sont souvent désignées dans la littérature par les termes « PM₁₀ » (masse de particules de diamètre $d_p < 10 \mu\text{m}$), « PM_{2.5} » ($d_p < 2.5 \mu\text{m}$) et « particules ultra fines » ($d_p < 100 \text{nm}$). On distingue plusieurs classes de taille car plus les particules sont petites, plus elles ont la capacité de pénétrer dans l'organisme (*cf.* Figure 1.1). Leurs

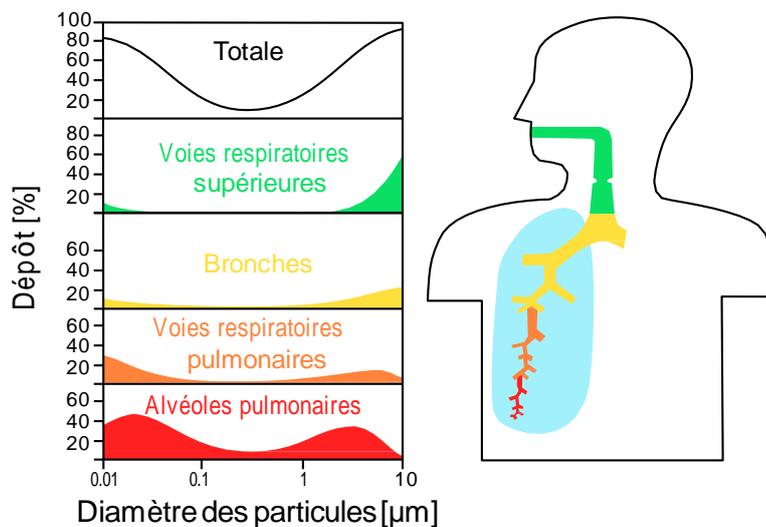


Figure 1.1 – Dépôt des particules dans les voies respiratoires en fonction de leur taille [5].

effets sur la santé dépendent donc également de leur taille.

- Les particules PM10 (parfois appelées « particules thoraciques ») peuvent pénétrer jusqu'à la partie supérieure du système respiratoire ;
- Les particules PM2.5 peuvent, lorsqu'elles sont inhalées, accéder dans les poumons, à la zone d'échange avec le gaz ;
- Les particules ultra-fines, quant à elles, peuvent facilement se frayer un chemin jusqu'aux voies sanguines.

Plusieurs études ont mis en évidence l'augmentation du nombre de décès dus à des maladies cardiovasculaires ou respiratoire, notamment chez les personnes âgées. En 2001 en Europe, les études APHEA (*Air Pollution and Health : an European Approach*) et APHEA-2 [3] se sont penchées sur le lien entre mortalité de la population et quantité de PM10. L'étude porte sur des données collectées pendant les années 1990 et considère une population de 43 millions d'habitants vivant dans 29 villes européennes. Le principal résultat de l'étude APHEA est que la mortalité journalière s'accroît de 0.6% par $10 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ d'augmentation des concentrations en PM10 [4].

Des études similaires ont été réalisées aux États-Unis (*National Mortality, Morbidity and Air Pollution Studies*) en considérant les données relatives aux 20 plus grands centres urbains entre les années 1987-94. La conclusion de ces études est similaire à celles menées en Europe : la mortalité journalière augmente de 0.5% par $10 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ de PM10. Les admissions hospitalières ont été considérées dans chacune de ces études et sont résumées dans la Table 1.1.

Notre étude portera sur les particules dites « ultrafines ». Bien que ces dernières contribuent peu à la masse de particules émises par les moteurs à combustion, ce sont elles qui contribuent le plus au nombre [10]. Elles offrent par conséquent une surface d'échange très importante. En termes d'effet sur la santé, les particules ultrafines peuvent se rendre responsables d'une baisse de la capacité du sang à coaguler, et sont aussi responsables de cancers des voies respiratoires [4].

De nombreux instituts sanitaires publics de pays industrialisés ont réalisé des expertises qui mènent aux mêmes conclusions : l'IARC en 1989, l'INERIS en 1993 et l'HEI en 1995 entre autres [2]. Certains composés des particules de suies sont reconnus comme cancérigènes ou mutagènes. Les particules Diesel ont d'ailleurs été classées comme cancérigènes par le Centre international de recherche contre le cancer en 2012.

		APHEA-2	NMMAPS
Asthme et maladies chroniques d'obstruction pulmonaire	Min.	0.4	1.0
	Max.	1.5	1.9
	Moy.	1.0	1.5
Maladies cardiovasculaires	Min.	0.2	0.9
	Max.	0.8	1.3
	Moy.	0.5	1.1

Table 1.1 – Taux d'augmentation des entrées dans les hôpitaux en fonction de la concentration en PM10, en %/ $10 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ [4].

1.1.2 Polluants et normes

Dans une période où le contexte environnemental et écologique est hissé au rang de priorité, la réglementation s'est adaptée au cours des dernières décennies. Le domaine des transports n'y faisant pas exception, l'Union Européenne a mis en place des normes d'émission (normes Euro) dès 1992 pour réduire les rejets de polluants du secteur des transports terrestres. Elles en fixent les limites maximales et sont mises à jour régulièrement. Ces normes distinguent les véhicules à motorisation Diesel et les véhicules fonctionnant grâce à l'essence mais aussi aux carburants GNV¹/GPL².

Initialement, les normes européennes (Euro 1 et Euro 2) réglementaient les émissions de monoxyde de carbone (CO), d'oxyde d'azote (NO_x) et d'hydrocarbures (HC) des moteurs de type essence (et GNV/GPL) et Diesel. Concernant ces derniers, les concentrations de particules en masse (PM) étaient aussi initialement réglementées. Puis les NO_x et les HC furent réglementés séparément à partir de la norme Euro 3 (2000). Les émissions d'hydrocarbures non méthaniques (Euro 5, 2011) et de particules en nombre (Euro 5b pour motorisation Diesel et Euro 6b pour motorisation essence) furent limitées par la suite. Les différentes réglementations et les limites d'émissions correspondantes ont été synthétisées dans la Table 1.2.

Normes	Moteur	Euro 1 1993	Euro 2 1996	Euro 3 2000	Euro 4 2005	Euro 5a 2009	Euro 5b 2011	Euro 6b 2014
Hydrocarbures	Diesel	-	-	-	-	-	-	-
	Essence	-	-	-	-	100	100	100
Hydrocarbures non méthanique	Diesel	-	-	-	-	-	-	-
	Essence	-	-	-	-	68	68	68
Oxyde d'azote	Diesel	-	-	500	250	180	180	80
	Essence	-	-	150	80	60	60	60
HC+NO _x	Diesel	970	700	560	300	230	230	170
	Essence	970	500	-	-	-	-	-
Monoxyde de carbone	Diesel	2720	1000	640	500	500	500	500
	Essence	2720	2200	2300	1000	1000	1000	1000
Particules (PM)	Diesel	140	80	50	25	5	4.5	4.5
	Essence	-	-	-	-	5	4.5	4.5
Particules (PN)	Diesel	-	-	-	-	-	6	6
	Essence	-	-	-	-	-	-	6

Table 1.2 – Evolution des normes Euro au cours des années. Toutes les valeurs sont exprimées en mg/km sauf le nombre de particules (PN) exprimé en 10^{11} particules/km [7].

Afin de mieux contrôler les émissions de polluants durant la vie du véhicule, l'agence américaine *California Air Resources Board* (CARB) demande aux constructeurs d'équiper d'un système OBD (*On-Board Diagnostic*) tout nouveau véhicule à motorisation thermique essence vendu en Californie à partir de 1991. L'acronyme OBD est un terme général qui fait référence à la capacité qu'a un véhicule d'auto-diagnostiquer le bon fonctionnement de son moteur, ses actuators, ainsi que son système de dépollution grâce à des capteurs.

Cette initiative, prise par l'agence CARB, sera appelée plus tard OBD-I. La norme OBD-II, amélioration d'OBD-I, fut mise en place en 1996. Elle fut rendue

1. Gaz Naturel Véhicule
2. Gaz de Pétrole Liquéfié

obligatoire pour toutes les voitures construites et destinées à être vendues sur le territoire des États-Unis d'Amérique. Enfin, l'Union Européenne a choisi d'adopter et de rendre obligatoire sa propre réglementation en terme d'OBD (appelée EOBD) en 2000. Cette mesure est étendue aux véhicules Diesel en 2003.

C'est donc dans ce contexte que le développement de techniques d'analyse embarquées (OBD), sensibles à la masse de particules émises, furent développées. L'apparition récente (à partir d'Euro 5) du contrôle de la concentration en nombre de particules soulève donc une nouvelle problématique : l'intégration sur les lignes d'échappement, de capteurs dits « nombre » pour le diagnostic embarqué du filtre à particules.

1.1.3 Post-traitement des gaz d'échappement

Afin de satisfaire ces normes, les véhicules utilisant des moteurs à combustion interne ont connu un certain nombre d'évolution. Le traitement des gaz d'échappement nécessite de considérer à la fois les polluants gazeux et les aérosols, c'est-à-dire les particules, dont les particules de suie.

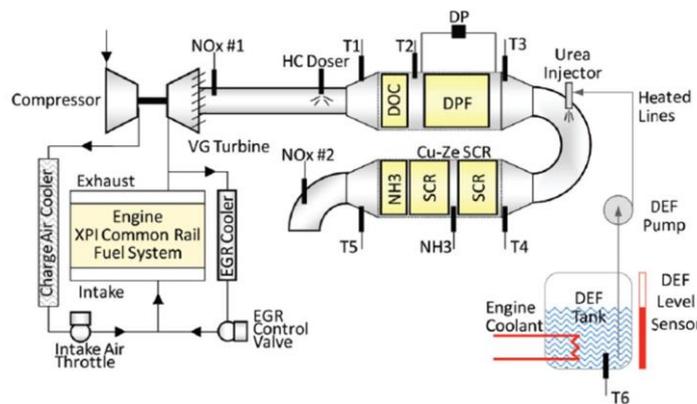


Figure 1.2 – Système de post-traitement des gaz d'échappement pour un moteur Diesel [11].

La Figure 1.2 représente schématiquement un moteur Diesel équipé de son système de dépollution. Ce système est complexe et est composé de plusieurs éléments assurant la dépollution des gaz d'échappement. Le catalyseur d'oxydation Diesel (DOC) permet l'oxydation de CO et HC en dioxyde de carbone et en eau. Pour une température suffisamment élevée, son taux de conversion peut dépasser 90% [12]. Il permet également d'éliminer les composés aromatiques et la fraction soluble des suies (cf. paragraphe 1.5.1). Avec l'apparition des filtres à particules, le DOC s'est vu assigner deux nouvelles fonctions :

- l'oxydation du NO pour produire du NO_2 . Ce dernier est utilisé pour oxyder sélectivement les particules de suie ;
- le réchauffage du FAP (filtre à particules) lors des phases de régénération active (les réactions d'oxydation étant exothermiques).

Afin de réduire les émissions de particules à l'échappement des moteurs Diesel, des filtres à particules sont utilisés et rendus obligatoires depuis 2011. On distingue deux types de filtration.

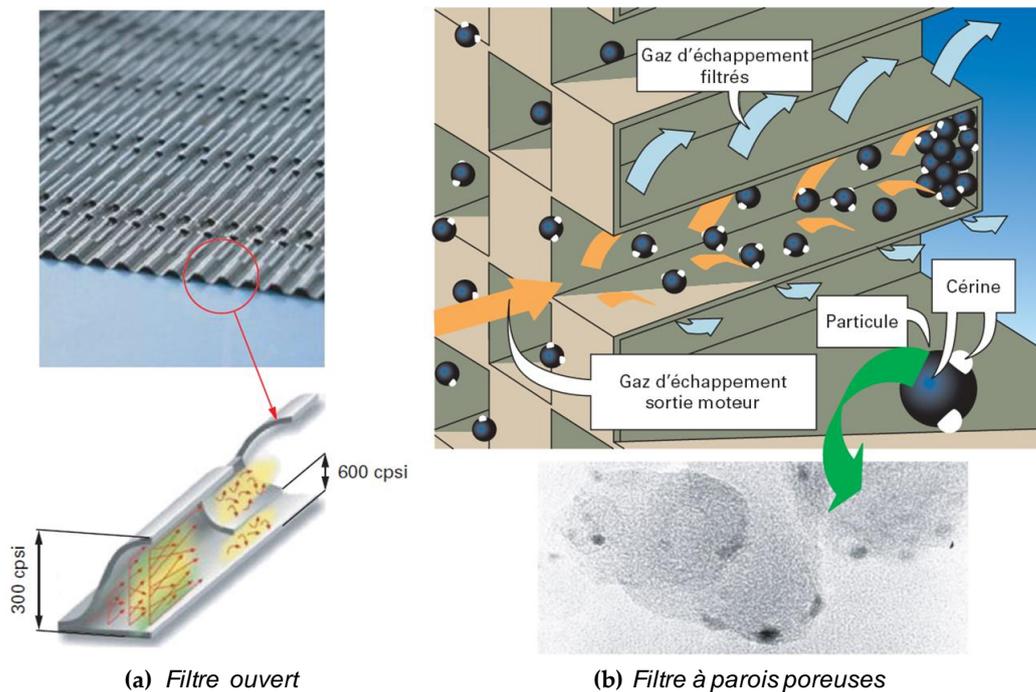


Figure 1.3 – Principe de collecte de deux types de filtres [12]. La cérine représentée sur les particules permet de catalyser l'oxydation des suies lors des phases de régénération du FAP, lorsque celui-ci est non catalysé. On parle alors de FAP additivé.

Premièrement, la filtration par impact sur les parois (filtres ouverts). Cette solution ne permet pas d'atteindre des niveaux d'efficacité excédant 60% en masse. La structure du filtre est en nid d'abeille et est composée de cellules en acier inoxydable qui jouent le rôle d'impacteurs. L'avantage de tels filtres est qu'ils ne colmatent pas car ils sont ouverts. Néanmoins, des bouffées de particules s'en échappent régulièrement.

Deuxièmement, la filtration à travers une paroi poreuse. Son efficacité de collecte est supérieure à 90% en masse. Les particules sont piégées sur les surfaces poreuses qui constituent le filtre. C'est la géométrie des filtres (cf. Figure 1.3) qui impose aux gaz porteurs de traverser ces parois. On peut également distinguer deux types de FAP. Sur les FAP catalysés, du platine est ajouté pour promouvoir l'oxydation des suies. Les filtres additivés utilisent (comme sur la Figure 1.3) un additif métallique ajouté dans le carburant. Cet additif n'est pas consommé dans la chambre de combustion et se retrouve directement à l'échappement, au même titre que les suies. Ces deux composés se déposent donc dans le FAP, où l'additif métallique jouera le rôle de catalyseur pour la réaction d'oxydation de la suie.

Lors du fonctionnement du moteur, le filtre se charge en particules, ce qui a tendance à améliorer son efficacité. Néanmoins, l'accumulation de suies finit par engendrer des pertes de charges préjudiciables au bon fonctionnement du moteur. Il est donc nécessaire de brûler régulièrement les suies qui se sont déposées dans le filtre. Cette phase est appelée régénération du filtre. Deux types de régénérations sont à distinguer. La régénération active est réalisée grâce à une injection de car-

burant tardive qui ne va pas brûler dans la chambre de combustion mais dans le DOC, provoquant ainsi une augmentation de la température des gaz d'échappement en aval de celui-ci. Lorsque le carburant atteint le FAP, il lui apporte la chaleur nécessaire à oxyder les suies. La régénération passive ne nécessite pas une température aussi élevée (300 – 400°C) que la régénération active. Son principe est d'exploiter la réactivité des suies avec le NO_2 ayant pour produit CO_2 et N_2 .

Pour assurer le bon fonctionnement des filtres à particules, mais aussi dans le but de détecter un dysfonctionnement, différents capteurs sont placés sur la ligne d'échappement. Nous verrons que plusieurs technologies de capteurs utilisent des mécanismes de captation électriques, mais ce n'est pas le seul domaine pour lequel la captation de suies (et de particules au sens large) présente un intérêt.

1.2 Technologies de captation

La physique des aérosols et en particulier la captation de nanoparticules intervient dans différents domaines et concerne différents types de particules (suies, virus, pollens...). Les applications techniques portent essentiellement sur la filtration ou la détection de ces nanoparticules. Nous porterons notamment notre attention sur les technologies dans lesquelles les mécanismes électriques jouent un rôle dans la captation : les capteurs dits « accumulatifs » et les capteurs basés sur la charge électrique des particules, mais aussi les filtres électrostatiques. Il existe également des appareils d'analyse basés sur des phénomènes électriques. Ils seront quant à eux présentés dans le Chapitre 2, dédié aux méthodes expérimentales utilisées au cours de cette étude.

1.2.1 Électrofiltres

Les électrofiltres existent depuis plus de cent ans : la première utilisation industrielle d'un tel dispositif date de 1880, même si son principe de fonctionnement est un peu plus ancien (1820) [13]. Historiquement, l'installation des premiers électrofiltres est justifiée par la valeur économique des particules amassées (fumées d'acide sulfurique, fumées d'oxydes métalliques). Ces dispositifs avaient des dimensions très conséquentes (distances inter-électrodes de l'ordre du mètre) et fonctionnaient pour des vitesses de gaz très faibles (1,5 m/s à 1,8 m/s). Les moyens techniques ne permettaient pas de dépasser des tensions de 15 kV et une efficacité de collecte de 95% [14].

Un filtre électrostatique est composé d'une électrode haute tension qui ionise le gaz environnant. Les molécules ionisées diffusent vers la surface des particules aéropartées. Elles sont alors chargées et migrent vers une électrode de collecte (reliée à la masse) par électrophorèse. Rappelons que l'électrophorèse désigne la migration (-phorèse) de particules chargées sous l'influence d'un champ électrique (cf. Section 1.6.4) Une fois collectées, les particules se fixent durablement à l'électrode jusqu'à tomber (effet de masse ou vibration de la surface collectrice).

Comme le représente la Figure 1.4, il existe deux types d'électrofiltres dans l'industrie. Les électrofiltres fil-cylindre sont utilisés pour les particules formant un

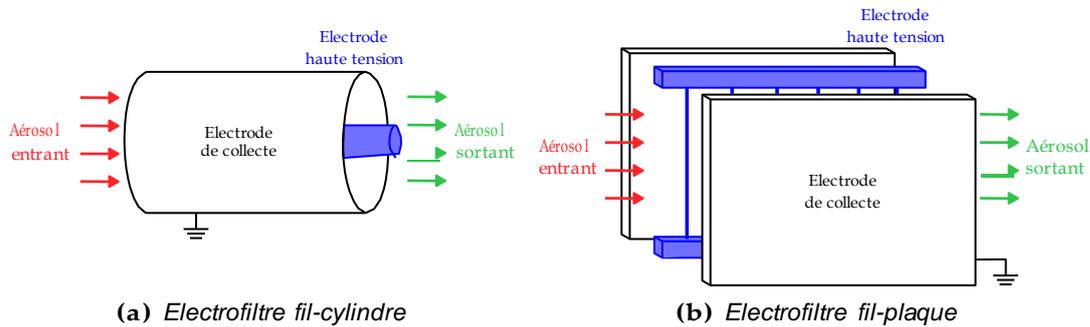


Figure 1.4 – Deux principaux modèles d'électrofiltres [15].

film liquide avant de s'écouler naturellement (particules volatiles). Les électrofiltres fil-plaques sont davantage utilisés pour la collecte de poussières (particules solides). Par ailleurs, on distingue les électrofiltres fil-plaque à un ou deux étages. Dans le premier cas, les particules sont chargées et collectées dans le même volume. Dans le second, une électrode pré-charge les particules par ionisation du gaz porteur et la captation a lieu en aval dans un système plaque-plaque. Ce mécanisme de charge avant la captation est aussi utilisé pour le compteur de particules Pegasor (cf. paragraphe 1.2.3).

Pour la captation des particules dans un électrofiltre, l'électrophorèse est le principal phénomène responsable de l'efficacité du dispositif.

1.2.2 Vue d'ensemble des capteurs de suie

Diagnostic embarqué du filtre à particules (FAP)

Les capteurs de suie ont été développés pour répondre aux normes OBD. Ils sont conçus pour répondre à deux besoins :

- L'estimation massique de la quantité de suie présente dans le FAP (capteur positionné en amont du filtre) ;
- La détection d'une baisse d'efficacité du FAP (capteur positionné en aval du filtre).

Différentes technologies ont été développées pour répondre à chacun de ces besoins. La Table 1.3 fait une synthèse des technologies utilisées et de leurs applications. Dans cette section, nous allons évoquer ces différentes technologies.

L'estimation des émissions massiques de suie a pour objectif de définir le moment opportun de déclenchement de la régénération active du filtre. Celle-ci doit intervenir avant que le filtre ne soit totalement saturé (colmaté), mais pas trop fréquemment afin de ne pas dégrader inutilement la consommation en carburant du véhicule, voire de conserver une quantité minimale de suie dans le filtre, ce qui contribue au maintien d'une efficacité de filtration suffisante. La régénération a lieu lorsque la ligne d'échappement est à une température suffisamment élevée (trajets sur autoroute notamment). Différents dispositifs permettent d'estimer la quantité de suie accumulée dans le FAP. Nous pourrions citer les capteurs de pression, qui

Soot sensor technology	Application			Example developers
	DPF soot mass estimate	OBD		
		DPF failure monitoring	PN monitoring	
Delta P (differential pressure)	✓	✓		Bosch, Delphi, EngineSens, Sensata, Continental, ...
Radio frequency (RF)	✓			GE, Filter Sensing Technology
Accumulating electrode		✓		Bosch, Continental, Delphi, Electricfil, Stoneridge, Denso, NGK, Heraeus
Electric charge		✓	✓ Pegasor	Pegasor, NGK-NTK, Emisense, Honeywell

Table 1.3 – Récapitulatif des technologies de capteurs de suie, d'après [16].

mesurent la perte de charge due à l'accumulation de suie [16]. Il s'agit de la solution la plus utilisée actuellement. Les capteurs RF (*Radio Frequency*) quant à eux, sont composés d'antennes micro-ondes. Ceci leur permet de mesurer la vitesse de propagation des ondes dans un FAP plus ou moins chargé en suies [17].

Néanmoins, si les capteurs RF permettent de signaler la nécessité d'une régénération active du FAP, ils ne permettent pas d'évaluer une éventuelle baisse d'efficacité. Ceci peut être réalisé par différents types de capteurs OBD dont on distingue deux grandes familles : les capteurs basés sur la charge électrique et les capteurs accumulatifs. Notons enfin que les capteurs de pression peuvent mesurer une chute importante de pression pouvant correspondre à un endommagement du filtre mais restent relativement imprécis d'où la nécessité de développer les technologies citées précédemment.

Qualité de l'air

En marge du diagnostic du FAP, un nouveau besoin a émergé récemment : le contrôle de la qualité de l'air. La distribution spatiale de la concentration de l'aérosol atmosphérique pour évaluer ou prédire le niveau de pollution locale peut être réalisée par un réseau de capteurs. De plus, ces données s'avèrent précieuses pour les études d'épidémiologie [18]. Enfin, des mesures dans l'habitacle des véhicules permettent de contrôler l'efficacité des dispositifs mis en place pour protéger les occupants. Ces applications nécessitent des mesures atmosphériques fiables et portatives.

Les particules étudiées dans ce contexte sont plus grosses (croissance par agglomération) et l'aérosol est moins concentré qu'à l'échappement d'un moteur. Les dispositifs de mesure adaptés à cet environnement doivent avoir une sensibilité accrue. La principale technologie présente dans le commerce pour ce type de mesures atmosphériques sont des capteurs optiques. Toutefois, des alternatives existent, comme les capteurs gravimétriques entre autres.

1.2.3 Capteurs basés sur la charge électrique

La technologie de ces capteurs est basée sur le fait de pré-charger les particules, puis de mesurer leur charge afin d'estimer le taux d'émission massique de suie. Cette technique est aussi utilisée pour estimer la concentration en nombre de particules grâce à l'appareil de mesure Pegasor, qui fut initialement développé en tant qu'outil de laboratoire. Néanmoins, il y a de nombreuses différences entre l'application

en laboratoire et l'utilisation de tels instruments en temps qu'OBD. En effet, s'ils possèdent une bonne précision, ils sont relativement onéreux et encombrants. Les capteurs OBD quant à eux, doivent être peu volumineux et peu chers. Ils doivent également se montrer fiables dans les conditions de températures et de vibration d'un véhicule. Malgré ces difficultés, l'application de cette technologie aux capteurs OBD suscite un intérêt qui date du début des années 2000 [16]. Les deux principales technologies qui ont vu le jour sont présentées ici.

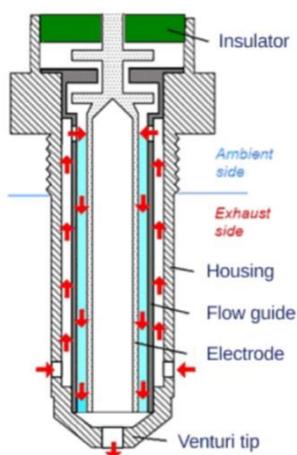


Figure 1.5 – Schéma de principe du capteur EmiSense [16] (la distance inter-électrodes est de 1,3 mm).

La première utilise le contact direct entre les particules et une électrode cylindrique soumise à une haute tension (10 kV) pour charger les particules de suie. Les particules se déposent sur les électrodes et forment des dendrites. Après avoir atteint une taille critique, les dendrites se détachent, portant des charges électriques plus importantes que les particules individuelles qui les constituent [19]. La charge perdue par les électrodes est ensuite mesurée afin d'estimer la masse des particules de suie. C'est sur ce principe que reposent les capteurs EmiSense (cf. Figure 1.5).

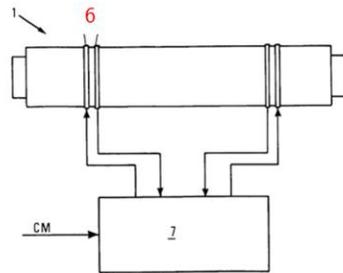
La seconde technologie est celle du Pegasor. Son principe physique est développé plus tard (cf. Section 2.5.4). Des études ont été menées dans le but de calibrer un tel instrument afin qu'il soit en mesure de détecter à la fois le nombre (PN) et la masse (PM) des particules de l'aérosol [20]. Les principaux inconvénients de cette technologie sont son prix et son encombrement.

1.2.4 Capteurs accumulatifs

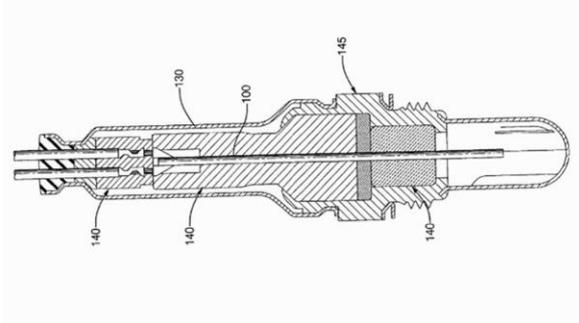
Les capteurs de suie résistifs sont basés sur l'accumulation des particules de suie sur et entre les électrodes. Cette accumulation de matière conductrice (suie) entre les électrodes provoque une modification des propriétés électriques du capteur. Les mesurands peuvent être la résistance ou la capacitance. Cette dernière dépend moins de la température que la résistance, ce qui constitue un avantage pour un capteur qui doit être opérationnel sur une grande gamme de températures. La capacité électrique peut donc fournir un signal plus stable [21].

C'est à la fin des années 1990 que les capteurs accumulatifs ont fait leur appa-

rition pour la mesure de la concentration massique en particules de suie. Au cours de leur développement, la géométrie des électrodes a évolué significativement. L'un des premiers brevets a été déposé par IFPEN en 1998 et évoque un capteur disposant d'éléments résistifs (6 sur la Figure 1.6) espacés de plusieurs millimètres. La résistance des électrodes est mesurée par le calculateur moteur (noté CM).



(a) FR 2 760 531 (IFPEN, 1998)



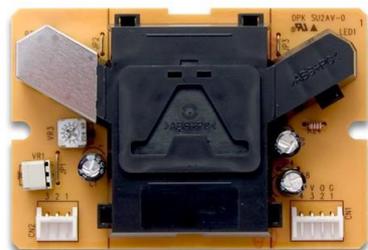
(b) US 6 634 210 (Delphi, 2003)

Figure 1.6 – Brevets de capteurs résistifs. (a) Les électrodes (6) sont enroulées autour d'un support cylindrique isolant (1). (b) Représentation des différents éléments constituant le support mécanique et les contacts électriques.

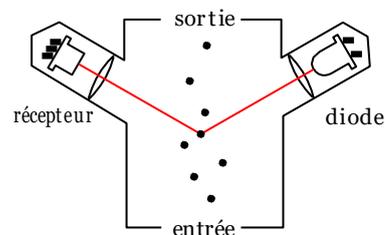
En 2003, l'entreprise Delphi Automotive dépose un brevet (US 6 634 210) pour un capteur s'inspirant du principe physique du premier, mais dont la distance inter-électrode est plus faible (100 à 500 μm). Les deux brevets mentionnent la présence d'un élément chauffant permettant de brûler les suies qui se sont accumulées sur le capteur. En 2005, l'entreprise Robert Bosch conçoit un capteur similaire (brevet FR 2 871 848) dont les électrodes sont inter-digitées.

1.2.5 Capteurs optiques

Les capteurs optiques sont les plus répandus dans le commerce. Le champ d'application est relativement large puisqu'il comprend des instruments de mesure de laboratoire, comme le CPC (*Condensation Particle Counter*, TSI, Shoreview,



(a) Photo



(b) Schéma de principe

Figure 1.7 – Capteur optique PPD20V, Shinyei.

USA). Des capteurs bons marchés et miniaturisés sont aussi commercialisés pour des mesures de qualité de l'air.

Le principe physique de ces derniers repose sur la diffusion d'un rayon lumineux (*light scattering* en anglais) par un aérosol de suie [22]. La concentration de l'aérosol influe sur l'intensité du rayon transmis au photo-détecteur (cf. Figure 1.7). Une corrélation permet d'obtenir une mesure en temps réel de la concentration massique. Toutefois, ce type de détection est dépendant de l'humidité de l'atmosphère [23] et des travaux visent à déterminer cette corrélation [24].

1.2.6 Capteurs gravimétriques

L'application des capteurs de type gravimétrique à la mesure des particules est relativement récente. Ils sont aussi utilisés pour des mesures de gaz. Parmi les capteurs gravimétriques, les résonateurs MEMS³ se caractérisent par des structures dont « une partie est en mouvement sans propagation d'onde mécanique » [25] (souvent un microlevier, comme sur la Figure 1.8). Leur principe physique repose sur la mise en vibration et la mesure de la fréquence de résonance de la partie en mouvement du système. La méthode la plus communément utilisée pour la mise en vibration est l'actionnement piézoélectrique, alors que la mesure de la fréquence de vibration peut être réalisée par des méthodes piézorésistive, piézoélectrique, capacitive ou optique [25].

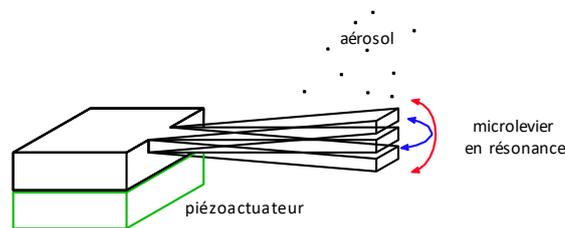


Figure 1.8 – Principe d'un résonateur MEMS à microlevier, d'après [26].

Pour la collecte de particules, plusieurs travaux montrent l'intérêt de combiner des mécanismes de captation avec la mesure. La diélectrophorèse [26], la thermophorèse [27] ont par exemple été explorées. Les avantages de cette technologie sont qu'elle est indépendante de la chimie des particules de suie et qu'elle peut être utilisée à température ambiante. Ces capteurs ne fournissent toutefois pas d'information sur la taille des particules composant l'aérosol de suies.

1.2.7 Conclusion sur les dispositifs de captation

De nombreux dispositifs utilisent un champ électrique pour la captation de particules nanométriques et dans des domaines d'applications très variés allant de la collecte de virus [28] à celle de particules de sable lunaire [29]. Bien que notre étude portera sur la captation des suies, des analogies peuvent être faites avec des dispositifs collectant d'autres types de particules. Concernant les capteurs de suie, la

plupart permettent d'obtenir des informations sur la quantité massique de particules piégées dans le filtre à particules ou d'estimer la masse de particules échappant à ce piège. Néanmoins, la concentration en nombre de particules dans les gaz d'échappement ne semble pouvoir être déterminée que par un capteur optique ou de type Pegasor. Bien que des études aient été menées dans ce sens [20], un tel capteur est difficilement embarquable à bord d'un véhicule et est relativement onéreux.

Les capteurs accumulatifs constituent une voie alternative pour la mesure embarquée des aérosols de suie. Dans cette étude, c'est un capteur résistif qui sera étudié. Ce type de capteur peut être décrit comme un capteur accumulatif mesurant la résistance des suies qui s'y sont déposées.

1.3 Capteurs résistifs

Après avoir présenté différentes technologies mettant en jeu la captation d'aérosols et présenté différents capteurs de suie, détaillons la technologie étudiée dans cette étude : les capteurs résistifs. L'étude de cette technologie est relativement répandue dans la littérature et constitue une voie prometteuse dans l'approche OBD (*on-board diagnostic*) car c'est une solution à la fois robuste et peu onéreuse.

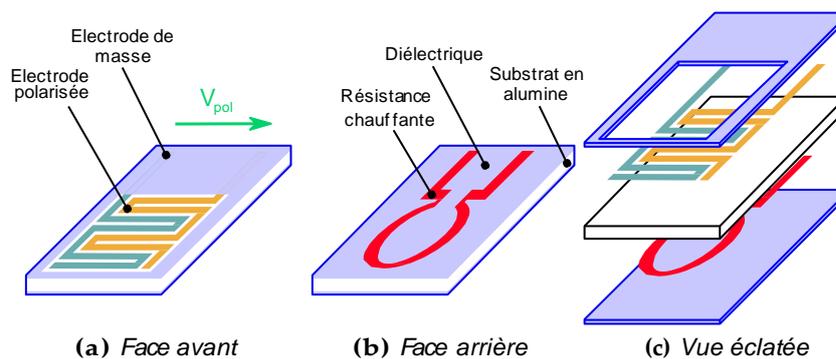


Figure 1.9 – Schéma du capteur EFI Automotive.

En 2011, l'entreprise EFI Automotive a fabriqué des capteurs accumulatifs à électrodes inter-digitées dont l'espace inter-électrode est de $20 \mu m$. Cette courte distance est obtenue grâce à un procédé de gravure laser. Ce capteur est représenté par la vue éclatée de la Figure 1.9 et comporte un élément sensible (face avant) et une résistance chauffante (face arrière). L'étude CICALAMEN 2, menée par IFPEN, EFI Automotive, l'École des Mines de Saint-Étienne, CTI et Volvo Powertrain avait pour objectif « d'optimiser le concept de la mesure embarquée de particules par la méthode résistive et de développer une version préindustrielle du capteur principalement pour l'application OBD ».

1.3.1 Principe de fonctionnement

Comme nous l'avons mentionné plus haut, la suie collectée par l'élément sensible du capteur diminue sa résistance. En effet, la suie est principalement constituée

de carbone et est donc conductrice. L'espace inter-électrode est une donnée déterminante pour ce phénomène. En comblant l'espace inter-électrode, les suies font chuter la résistance de l'élément sensible. Le capteur EFI Automotive, dont la distance inter-électrodes est faible ($20 \mu m$), permet d'observer des structures de suie semblables à des ponts [30], qui lient les électrodes (dont l'une est chargée et l'autre est liée à la masse) entre elles. Cette observation est mise en évidence par la microscopie électronique à balayage (MEB) (cf. Figure 1.10).

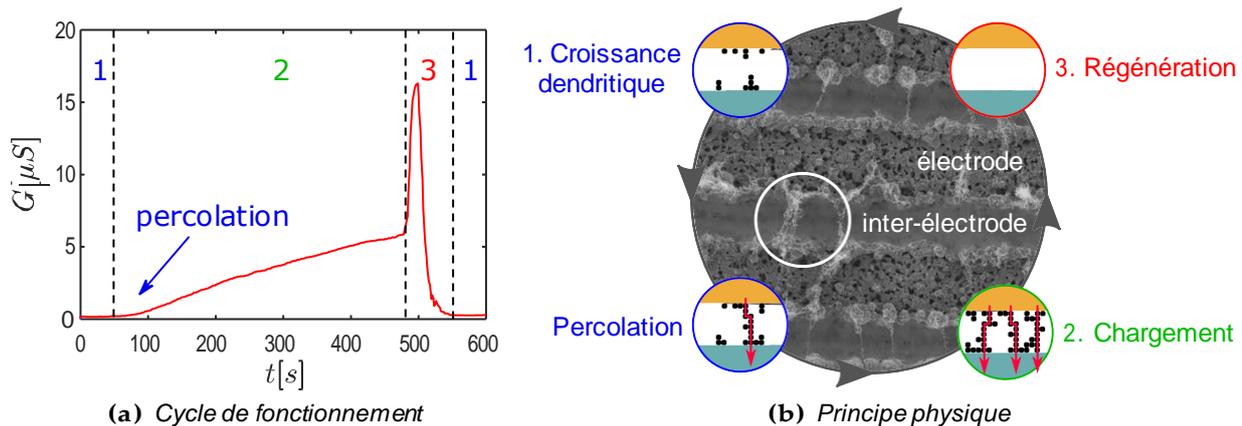


Figure 1.10 – (a) Signal correspondant au cycle de fonctionnement d'un capteur résistif. (b) Croissance des dendrites de suie entre une électrode polarisée (orange) et reliée à la masse (bleue). Image MEB d'après Grondin et al. [8].

La phase de construction des ponts est appelée percolation (étape 1 sur la Figure 1.10) et correspond au temps que le premier pont conducteur complet se forme. Au cours de cette phase, la conductance du capteur est stable et proche de zéro. Lorsque les premiers ponts sont construits, la conductance de l'élément sensible commence à augmenter grâce à la construction de ponts supplémentaires. Le taux de construction dépend de différents paramètres, tels que la concentration de l'aérosol ou la polarisation du capteur. Cette phase est appelée chargement (2). La croissance de la conductance tend vers une valeur seuil.

A ce point, il faut introduire un nouveau phénomène : la destruction des ponts de suie. Le courant qui parcourt les fines structures est susceptible de les détruire par effet Joule [8]. Ainsi, il existe un instant à partir duquel le taux de construction des ponts compense leur taux de destruction.

En pratique, le chargement a lieu jusqu'à ce que le capteur soit régénéré (3) à une température d'environ $700^\circ C$: les suies sont brûlées, les ponts détruits et la valeur initiale de la résistance est rétablie. Le capteur est alors prêt pour un nouveau cycle. Ce principe de fonctionnement ne permet donc pas réellement d'obtenir des données sur l'aérosol en temps réel puisque c'est la fréquence de régénération (déclenchée lorsque le signal atteint un seuil de conductance) qui est mesurée pour évaluer la concentration de suie. D'après le projet les études du projet CICLAMEN 2, le temps de chargement du capteur varie de 950 secondes (pour une concentration d'environ $6 mg/m^3$) à 250 secondes (pour une concentration d'environ $37 mg/m^3$) [31]. Finalement, le signal est traité afin d'obtenir des résultats moyennés temporellement, qui sont corrélés à d'éventuels défauts de fonctionnement du filtre à particules.

1.3.2 Études aérodynamiques

Le temps de réponse est un point critique pour le capteur de suie. Afin de l'améliorer, un « nez » peut être ajouté afin d'optimiser l'aérodynamique dans le voisinage du capteur, pour mieux la maîtriser et la rendre moins dépendante des fluctuations de débit occasionnées par le fonctionnement du moteur. Deux nez ont été comparés lors de l'étude CICLAMEN 2 (nez vortex et nez en « F », cf. Figure 1.11). Le nez « vortex » génère un tourbillon dans le volume avoisinant l'élément sensible. Cependant, ce phénomène ne permet pas d'opérer une ségrégation sur les particules les plus grosses. De plus, la zone de collecte n'est pas homogène. A cause de l'orientation du vortex, une partie de l'élément sensible n'est pas soumise au flux de particules.

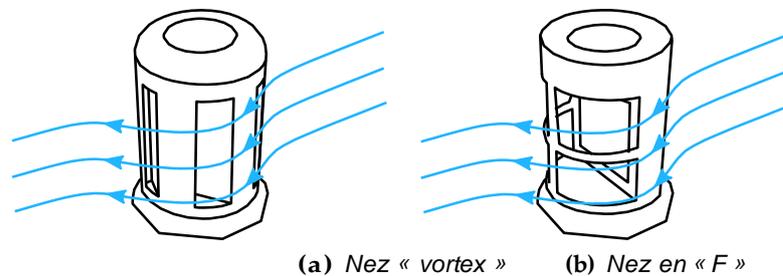


Figure 1.11 – Nez de capteur étudiés dans l'étude CICLAMEN 2.

Le nez en « F » permet d'opérer une ségrégation en taille des particules, comme on peut le voir sur la Figure 1.12. L'inertie des particules les plus massives les empêche de pénétrer à l'intérieur du nez. Les particules admises au voisinage de l'élément sensible sont donc les plus fines (*ie.* $d_p = 100\text{nm}$). D'autres études évoquent l'influence du nez dans un contexte d'intégration du capteur et de répétabilité [32, 33].

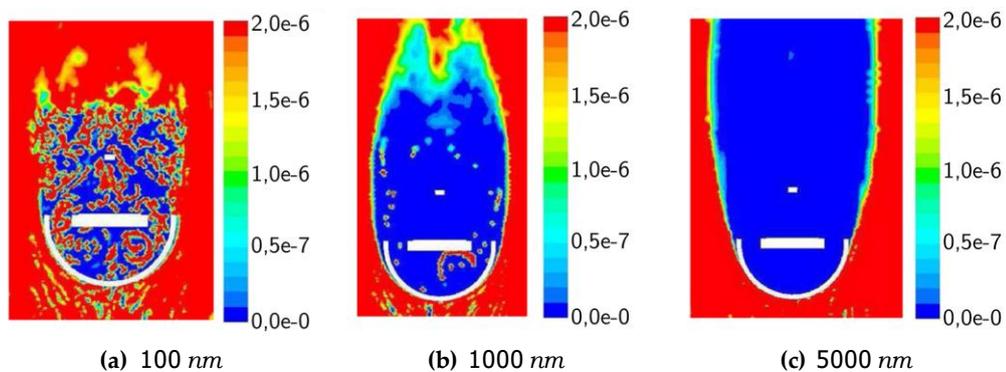


Figure 1.12 – Concentration (unité arbitraire) simulée de particules sphériques au voisinage du capteur [34]. Le flux de gaz porteur est représenté du bas vers le haut.

1.3.3 Étude de la polarisation

Grondin *et al.* [30] ont mis en évidence l'influence de la tension de polarisation d'un capteur résistif sur son signal et ce, pour différents types de suies. L'aérosol de suie est généré par un brûleur mini-CAST puis chauffé à 180 °C avant d'être envoyé sur le capteur. L'ensemble du banc d'essai sera décrit dans le Chapitre 2. La Figure 1.13 montre la réponse du capteur pour différentes tensions de polarisation et pour un point de fonctionnement donné (noté PF1 dans le Chapitre 2).

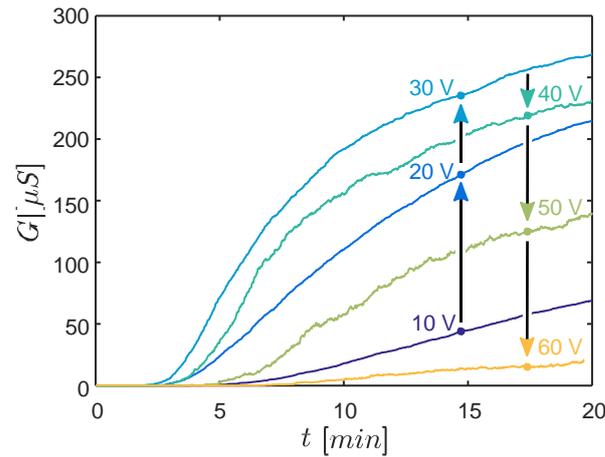


Figure 1.13 – Réponse du capteur EFI Automotive pour différentes tensions de polarisations, d'après [8].

Entre 0 et 30 V, plus la tension augmente, plus la réponse est rapide. Ceci est interprété comme une amélioration de la capture des particules de suie en lien avec l'électrophorèse, et donc une augmentation de la fréquence de formation des ponts de suie. Au-delà de 30 V, la réponse est plus lente et moins régulière : le signal suit la même tendance mais est plus fluctuant (« bruité »). Ceci s'explique par une augmentation du taux de destruction des ponts de suie par effet Joule. Il existe donc une tension critique au-delà de laquelle l'équilibre entre destruction et construction des ponts est modifié. Les études de Grondin *et al.* ont porté sur plusieurs points de fonctionnement du générateur de suie et ont montré une influence du taux de *black carbon* et de la granulométrie de l'aérosol sur la tension critique.

1.3.4 Phénoménologie de construction des ponts

Des simulations réalisées par Teike *et al.* [35] mettent en évidence l'influence de l'électrophorèse sur la formation des ponts de suie. Elles utilisent un suivi Lagrangien des particules et tiennent compte des effets aérodynamiques, de la diffusion brownienne et de l'électrophorèse. Le champ électrique généré par les électrodes (rectangles gris foncés en bas de la Figure 1.14) est mis à jour à chaque fois qu'une particule est captée. On parle d'un couplage entre le dépôt des particules de suie et l'électrostatique et l'aérodynamique. Ce couplage compte parmi les principaux résultats du travail de Teike *et al.*.

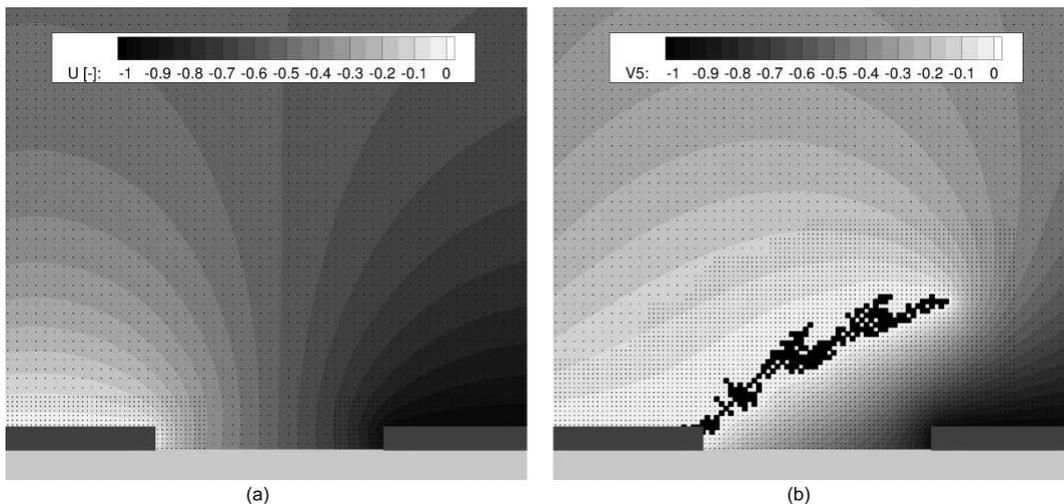


Figure 1.14 – Construction de dendrites par le modèle de Teike *et al.* [35]. Le potentiel normé est affecté par la présence de la dendrite.

En se construisant, les dendrites de suie augmentent l'intensité du champ électrique à leurs extrémités. Ainsi, lorsque la formation d'un pont de suie débute, les particules se déposent préférentiellement à son extrémité. L'effet d'antenne dû aux ponts de suie est illustré par la Figure 1.14. Le modèle utilisé par Teike *et al.* est bidimensionnel, ce qui est probablement responsable de l'allure de la dendrite : cette dernière a tendance à croître dans le sens de la hauteur autant que dans le sens de la longueur (les particules ne peuvent pas accéder à l'espace « sous » la dendrite, entre celle-ci et le support du capteur).

La phénoménologie de la formation des dendrites était encore peu étudiée avant le travail de Teike *et al.*. Dans ce travail de thèse, un modèle similaire sera utilisé pour étudier le capteur de suie développé par EFI Automotive. La principale différence entre les deux études est la distance inter-électrode ($100\ \mu\text{m}$ pour le capteur de Teike *et al.* et $20\ \mu\text{m}$ pour le capteur EFI Automotive), jouant sur le champ électrique. Une présentation plus détaillée sera faite dans le Chapitre 4.

1.3.5 Etude de la thermophorèse

La thermophorèse désigne la migration d'un aérosol sous l'action d'un gradient de température (*cf.* Section 1.6.6). Grondin *et al.* ont généré un gradient de température grâce à la résistance chauffante positionnée au dos du capteur de suie (*cf.* Figure 1.9), observant une augmentation du temps de percolation (passant de 3 à 35 *min*) pour un chauffage à $200\ ^\circ\text{C}$ avec un gaz chauffé à seulement $180\ ^\circ\text{C}$. De plus, Malik *et al.* [36] ont couplé l'utilisation d'un précipitateur thermophorétique⁴ avec un capteur résistif, en positionnant ce dernier sur la paroi froide. Plusieurs aérosols monodisperses ont été considérés ($50\ \text{nm}$, $80\ \text{nm}$ et $120\ \text{nm}$) et l'efficacité de captation n'est pas affectée de façon notable dans les conditions opératoires de

4. Dispositif composé d'une paroi chaude et d'une paroi froide, de part et d'autre de l'écoulement d'un aérosol. Sous l'effet du gradient de température, les particules migrent vers la paroi froide.

l'étude.

Plus récemment, Hagen *et al.* [37] ont analysé la puissance de chauffage dégagée par la polarisation de l'élément sensible du capteur. Pour 60 V, l'augmentation de la température due à la dissipation par effet Joule est de 19 °C après une exposition de 250 s à un flux de 30 mg/m³. Cette augmentation de température se traduit par une légère inflexion de la pente du signal. Ce mécanisme est par nature observable pour des hautes tensions, dont les valeurs sont relatives à la nature et aux propriétés des suies étudiées, comme le souligne Grondin *et al.*.

1.3.6 Conclusion sur les capteurs résistifs

Bien que de nombreuses études portent sur le capteur résistif et que son principe physique soit relativement simple, de nombreuses questions restent encore en suspens. Un grand nombre de paramètres ont été explorés, mais le diamètre des particules n'a pas encore fait l'objet d'une étude mettant en jeu des aérosols monodisperses. Or, l'étude de la sensibilité du capteur à la taille des particules est primordiale pour savoir si la technologie des capteurs résistifs est pertinente pour mesurer une concentration en nombre.

Les mécanismes de croissance des dendrites restent, encore aujourd'hui, relativement mal connus et peu d'articles y sont entièrement consacrés. La présence des structures dendritiques est expliquée par l'électrophorèse, et la modification locale du champ électrique par les dendrites elles-mêmes [35]. Une connaissance approfondie des particules de suie est indispensable pour aborder les mécanismes de captation de l'aérosol à la surface des électrodes d'un capteur résistif. C'est pourquoi l'étude bibliographique doit être enrichie des mécanismes de formation de suie, et de connaissances sur la mécanique des aérosols.

1.4 Mécanismes de formation de la suie

Les particules de suie sont formées lors d'une combustion. Leur gamme de taille est très étendue puisque les plus grosses particules sont de l'ordre du micron alors que les plus fines ne mesurent que quelques nanomètres. Dans ce paragraphe, nous nous pencherons sur leur mode de formation, ce qui nous permettra d'expliquer la variété des particules en termes de taille et de composition chimique.

1.4.1 Nucléation

Tout d'abord, nous nous intéressons à la phénoménologie de la formation des particules de suie lors d'une combustion. Pour cela, détaillons les différentes étapes et les différents processus qui interviennent dans ce phénomène, schématisés sur la Figure 1.15.

Dans un premier temps, lors de la combustion, l'oxydation incomplète du carburant est responsable de la production de composés aromatiques. Le processus d'addition de composés aromatiques à un seul noyau (tels que le benzène) engendre des HAPs (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques) qui constituent les précurseurs

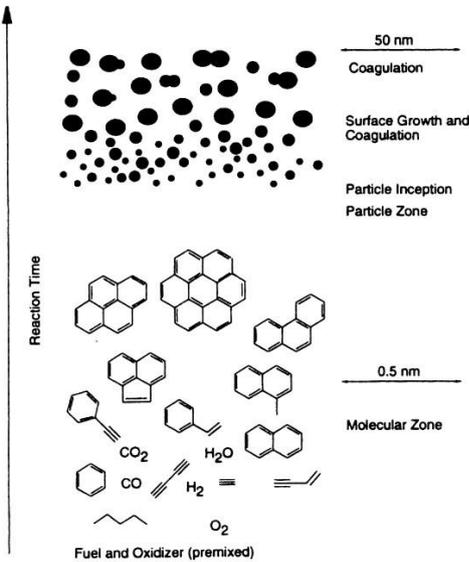


Figure 1.15 – Vue schématique de la formation des suies (flamme pré-mixée) [38].

moléculaires des sphérules de suies (particules élémentaires composant les agrégats de suie, cf. Section 1.4.4).

Les mécanismes de croissance des précurseurs mènent à l'apparition des premières particules détectables, il s'agit de la phase qui est appelée nucléation. Cette transition d'espèces en phase gazeuse vers des particules solides est la partie du processus de formation des suies qui est la moins bien connue [39]. Les particules issues de la nucléation sont appelées « particules primaires » (cf. Figure 1.16), ou sphérules. Après leur nucléation, les particules sont susceptibles de gagner de la masse par addition d'espèces gazeuses (HAP).

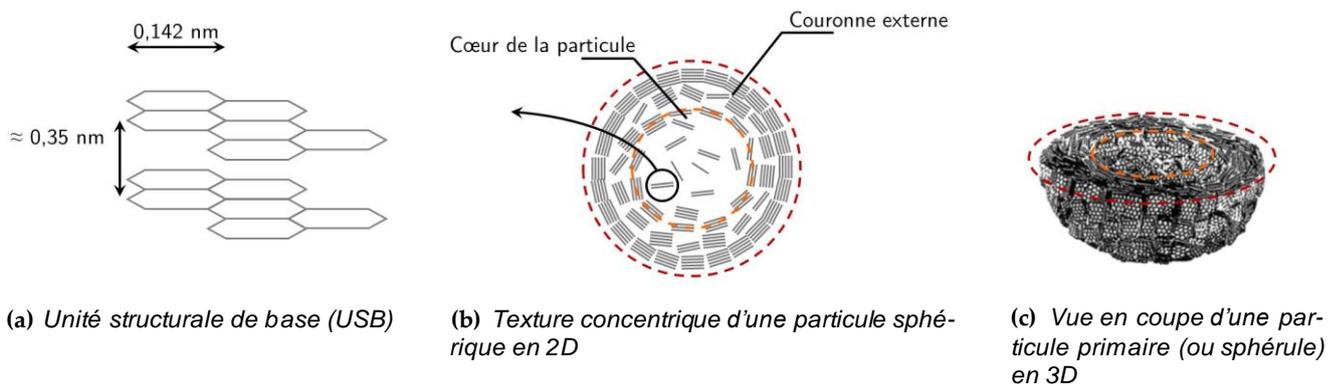


Figure 1.16 – Morphologie d'une particule primaire de suie (sphérule) [39].

La réaction d'oxydation des particules de suie et des HAP est en compétition avec leur formation. Elle contribue à réduire la masse de HAP (et impacte donc la nucléation) et de suie et conduit à la formation de CO et de CO₂ [38].

1.4.2 Processus de croissance

Il existe trois principaux processus qui tendent à augmenter la masse des particules de suie : les réactions de surface, la coagulation et l'agglomération. Pour comprendre la distribution en taille des particules, il est nécessaire de connaître leurs modes de croissance.

Les réactions de surface contribuent, d'après Bockhorn *et al.* [40], à 90% de la masse finale de suie dans l'aérosol. Les réactions de surface n'influencent pas le nombre de particules, mais leur fraction volumique dans l'échantillon. Selon Frenklach *et al.* [41], les mécanismes chimiques en jeu lors de ce processus sont similaires à ceux de la nucléation.

De plus, d'après D'Alessio *et al.* [42] l'espèce chimique qui réagit principalement à la surface des particules, dans une flamme d'éthylène prémixée, est l'acétylène (C_2H_2), même si le rôle des HAP n'est pas négligeable. De ce fait, les particules présenteraient de nombreuses liaisons C-H à leur surface. La perte d'un atome d'hydrogène activerait une espèce radicalaire, ce qui permettrait une polymérisation des particules [43]. Toujours d'après Frenklach *et al.*, le taux de croissance des particules diminue au fur et à mesure que ces dernières grossissent.

Au cours de la phase de coagulation, la masse des particules augmente et leur nombre décroît significativement. En effet, en entrant en collision, les particules « coagulent » pour former des particules sphériques plus massives [44, 45]. Des modèles analytiques existent pour décrire ce phénomène avec l'équation de coagulation de Smoluchowsky [46].

L'agglomération survient après les phases de croissance citées précédemment, quand les particules primaires sont dites « matures ». Elles se lient les unes aux autres par collisions pour former des structures plus ou moins compactes (des agrégats de sphères). La géométrie de ces agrégats peut être caractérisée par des grandeurs mathématiques : la dimension fractale et le pré-facteur fractal.

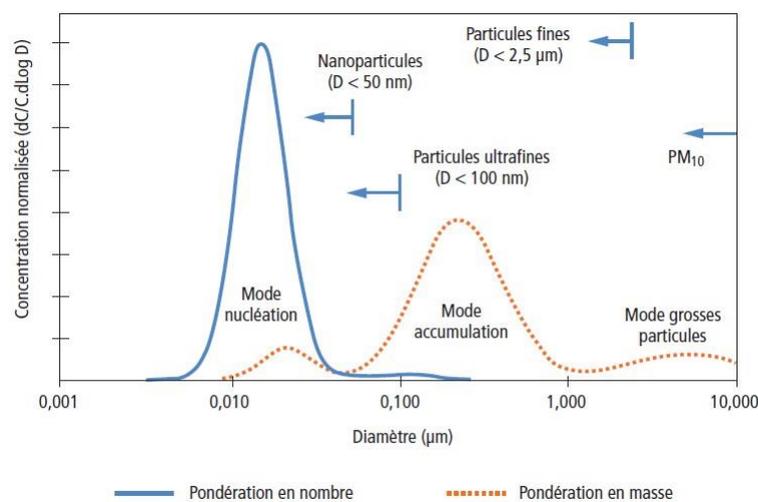


Figure 1.17 – Distribution granulométrique des particules issues des combustions Diesel [10].

La Figure 1.17 représente la concentration normalisée des particules en fonction de leur diamètre avec une pondération en masse et une pondération en nombre. On remarque que les particules les plus fines contribuent peu à la masse mais largement au nombre. Les particules les plus fines sont celles formées lors de la nucléation et qui n'ont pas subi de choc provoquant leur coagulation ou leur agglomération avec d'autres particules. Les plus massives sont celles issues des processus de croissance et d'agglomération décrits plus haut.

1.4.3 Modélisation et simulation

Il existe plusieurs approches permettant de modéliser la formation des suies : les corrélations empiriques, les modèles semi-empiriques, ainsi que les modèles fondés sur les mécanismes réactionnels de la formation des suies, dits « détaillés ».

Les corrélations empiriques sont les modèles les plus utilisés par les motoristes. Elles sont utilisables pour des conditions opératoires proches des conditions expérimentales pour lesquels ils ont été réalisés. Un exemple de modèle empirique portant sur la concentration en suies est présenté par Mehta *et al.* [47] et porte sur l'influence de différents paramètres moteurs (vitesse de mélange du spray, vitesse du moteur, taux de compression...) sur la formation des suies, et notamment sur la concentration. Néanmoins, si les conditions s'éloignent trop du modèle, les extrapolations ne sont pas exploitables [48].

Les modèles semi-empiriques prennent en compte certains aspects physiques et chimiques de la formation des suies issus de données expérimentales. Ces modèles conduisent en général à des équations cinétiques pour les réactions de formation des précurseurs (HAP) et des particules de suie. Le modèle développé par Tesner *et al.* [49] est un exemple d'une telle méthode. La formation des particules y est décrite par deux grandes étapes : la formation des précurseurs et l'évolution de la concentration en particules. Ce modèle fut, de par sa relative simplicité, largement utilisé.

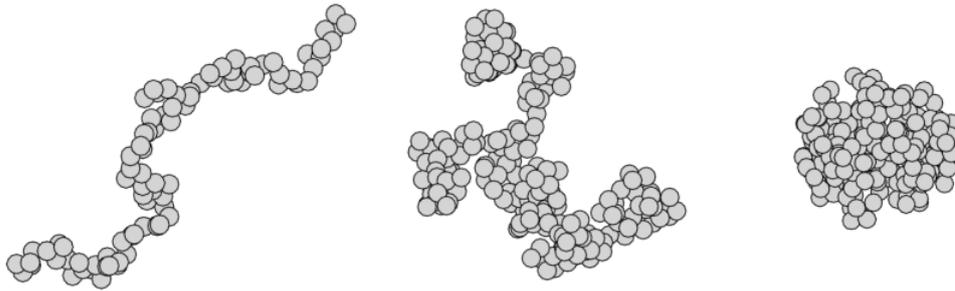
Les modèles détaillés décrivent le processus de formation des suies par des modèles comportant jusqu'à plusieurs milliers de réactions. Naturellement, cela engendre un besoin en puissance de calcul qui est si important qu'il est nécessaire de réduire le mécanisme réactionnel. Cette réduction ne mène pas nécessairement à une simplification de la chimie utilisée, mais à une simplification du modèle grâce à des outils mathématiques [43]. Selon Kennedy *et al.* [48], celui de Frenklach *et al.* était le modèle qui avait atteint, en 1997, le « plus grand niveau de sophistication ». Ce modèle sert en effet de base à des méthodes plus récentes et plus complexes [41].

1.4.4 Agrégats fractals

La nucléation et surtout les processus de croissance façonnent les particules de suie. Dans cette partie, nous allons nous pencher sur les différentes morphologies des particules de suie, et sur la façon de les caractériser.

Dimension fractale et pré-facteur fractal

La morphologie des agrégats est souvent associée à une grandeur appelée « dimension fractale ». Il s'agit d'une notion géométrique qui caractérise la capacité qu'a un ensemble dit fractal à remplir l'espace (cf. Figure 1.18). La géométrie des particules peut être décrite statistiquement au moyen du concept de la géométrie fractale [50].



(a) $D_f = 1.3$, $N_{pp} = 91$

(b) $D_f = 1.8$, $N_{pp} = 216$

(c) $D_f = 2.3$, $N_{pp} = 216$

Figure 1.18 – Particules de dimensions fractales différentes [51]. Ici, le pré-facteur fractal vaut $k_f = 2, 3$. D_f la dimension fractale et N_{pp} désigne le nombre de particules primaires.

Les agrégats fractals peuvent contenir jusqu'à plusieurs centaines de sphérules carbonées. Le nombre de sphérules est donné par la loi d'échelle statistique :

$$N_{pp} = k_f \frac{D_g}{d_{pp}}^{D_f} \quad (1.1)$$

Où k_f est le pré-facteur fractal, d_{pp} est le diamètre des particules primaires (ou sphérules), D_g est le diamètre de giration et D_f est la dimension fractale. Le rayon de giration se calcule de la façon suivante :

$$R_g^2 = \frac{1}{N_{pp}} \sum_{i=1}^{N_{pp}} (r_i - \bar{r}_0)^2 \quad (1.2)$$

Où $\bar{r}_0 = \frac{1}{N_{pp}} \sum_{i=1}^{N_{pp}} r_i$ est le centre (massique) du complexe de sphérules et r_i la position du centre de la $i^{\text{ème}}$ sphérule.

Analyse fractale d'échantillons

Park *et al.* [52] ont analysé des agrégats issus d'un moteur Diesel. La dimension fractale des échantillons a été mesurée par l'analyse d'images obtenues par microscopie électronique à transmission (MET), conduisant à une valeur de $D_f = 1.75$. La combinaison d'un DMA (*Differential Mobility Analyzer*, cf. Section 2.5.1), classifiant les particules selon leur mobilité électrique, avec un APM (*Aerosol Particle Mass analyzer*) qui les classe en fonction de leur masse, a permis aux auteurs, grâce à la

relation liant ces deux grandeurs [53], de caractériser la morphologie des agrégats grâce à une relation liant leur masse et leur diamètre de mobilité. Sachdeva *et al.* [54] rapportent des dimensions fractales comprises entre 1.70 et 1.83 pour des suies issues de la combustion de carburant Diesel. Les diamètres des particules primaires mesurés pour cette étude varient entre $d_{pp}=31 \text{ nm}$ et $d_{pp}=46 \text{ nm}$ en fonction de la source.

Yon *et al.* [55] ont analysé des échantillons de particules de suie produites par le brûleur mini-CAST et pour différents points de fonctionnement (*cf.* Section 2.3). Les dimensions fractales mesurées dans cette étude varient entre $D_f=1.73$ et $D_f=1.79$ en fonction des points de fonctionnement. De plus, le pré-facteur fractal est presque constant et vaut $k_f=1.94$ pour la plupart des échantillons. Le diamètre des particules primaires varie davantage et est compris entre $d_{pp}=26.6 \text{ nm}$ et $d_{pp}=36.3 \text{ nm}$. Ces données sont particulièrement intéressantes car nous utiliserons également un brûleur mini-CAST pour générer un aérosol de suies (*cf.* Chapitre 2). De plus, ceci montre que les suies générées par un mini-CAST sont similaires, sur le plan morphologique, à celles émises par les combustions de type Diesel.

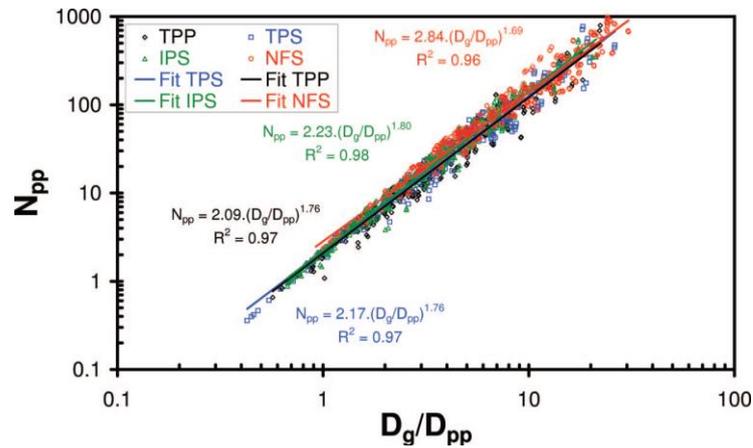


Figure 1.19 – Utilisation de la loi d'échelle pour la détermination des paramètres fractals. N_{pp} correspond au nombre de sphérules par particule, D_{pp} à leur diamètre et D_g au rayon de giration des agrégats [56].

Ouf *et al.* [56] ont réalisé une étude sur les particules générées par une flamme d'éthylène. Les particules ont été échantillonnées par différentes techniques *in situ* (Thermophoretic Piston Probe) et *ex situ* (Thermophoretic Particle Sampler, Insertion Particle Sampler, Nuclepore Filtration Sampler). Les images des nanoparticules ont été faites au moyen d'un microscope électronique à transmission (MET). Grâce à un algorithme d'analyse d'images, le nombre de particules primaires composant les agrégats et le rapport entre le diamètre de giration et le diamètre des particules primaires ont été déterminés (*cf.* Figure 1.19). Ces données permettent d'exploiter la loi d'échelle et d'en tirer les paramètres fractals vus plus haut : k_f et D_f . La dimension fractale est comprise entre 1,69 et 1,80 pour ce type de particules. Dans cette étude, le diamètre des particules primaires varie entre 24.4 nm et 37.1 nm en fonction de la méthode d'échantillonnage. Enfin, les préfacteurs fractals varient entre 2.09 et 2.84.

De nombreuses études ayant pour objet la relation entre la morphologie des

particules et leurs propriétés physiques nécessitent de connaître précisément les paramètres D_f , k_f et N_{pp} . Lorsqu'il s'agit d'études numériques, les résultats expérimentaux ne sont pas directement utilisés. Des modèles numériques pour simuler la forme des particules de suies leur sont préférés car ils sont plus faciles à mettre en oeuvre. Cette méthode a notamment été utilisée dans le travail de Iosifidis *et al.* [129] pour établir un modèle semi-numérique pour calculer le facteur de forme dynamique (cf. Section 1.6.3) en fonction des paramètres N_{pp} et D_f . Ce travail, réalisé dans le cadre du travail de thèse présenté ici, sera développé plus en détail dans la Section 4.8.

1.5 Propriétés physico-chimiques de la suie

1.5.1 Composition chimique des suies Diesel

Les particules issues de combustions ne sont pas uniquement composées de particules élémentaire ou d'agrégats de suie, comme l'illustre la Figure 1.20, même s'ils en représentent une partie très importante. Dans ce paragraphe, nous allons rappeler la composition chimique des particules de suie en nous focalisant sur celles issues des combustions de type Diesel.

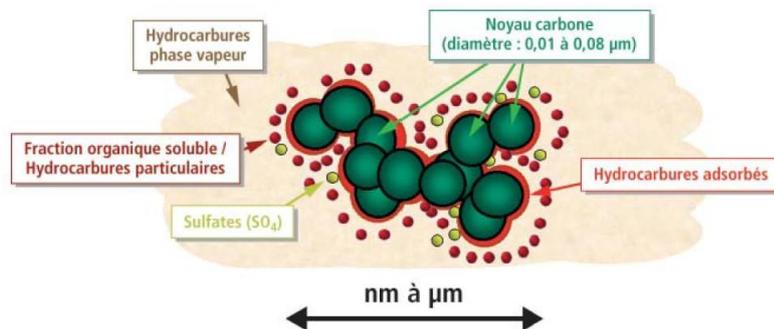


Figure 1.20 – Structure typique d'une particule de suie automobile [2].

En ce qui concerne les moteurs Diesel, les particules présentes dans les gaz d'échappement sont des systèmes complexes majoritairement composés ([57, 58, 59]) :

- de noyaux de carbone insolubles et engendrés par la combustion elle-même (formule globale : $CH_{0,27}O_{0,22}N_{0,01}$), aussi appelés sphérules ou particules primaires. Cette fraction comprend les hydrocarbures insolubles.
- d'une fraction organique soluble, abrégée par le sigle SOF (formule globale : $CH_{1,26}O_{0,2}N_{0,01}$) ;
- d'une fraction inorganique insoluble dans l'eau : aluminosilicates, Mn, Fe, V, Cr, Co, Zn, Sn, Pb...
- d'une fraction inorganique soluble dans l'eau : sulfates, nitrates... [60].

Dans le cadre de l'étude PRIMEQUAL/PREDIT, menée entre autres par IFPEN et l'INERIS (Institut National de l'Environnement industriel et des RISques) la composition des particules a été étudiée. L'étude a été réalisée par tranches granulométriques et est rapportée dans un rapport de l'ADEME par S. Barbusse et G.

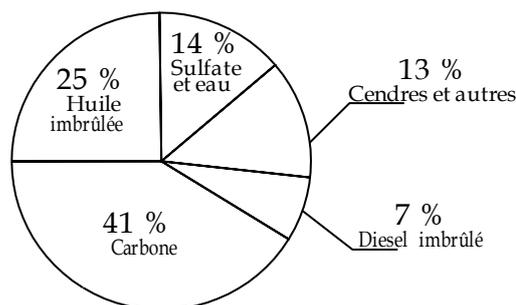


Figure 1.21 – Exemple de composition des particules émises par un moteur Diesel pour application poids-lourd pour un cycle transitoire (heavy-duty transient cycle), d'après [61].

Plassat [2] dont un aperçu des résultats est présenté sur la Figure 1.21. La teneur en sulfates des particules dépend de la teneur en soufre du carburant. Qui plus est, la teneur en soufre est très faible (inférieure à 0,4%) pour les particules de petite taille (inférieures à $1 \mu m$). Pour les particules plus volumineuses, la teneur augmente au-delà de 1,2%. Les sulfates représentent 3% de la masse totale de fraction organique soluble (SOF) des particules. Notons que la fraction organique soluble dépend fortement des conditions de formation des particules de suie, si bien qu'elle peut varier entre 20 et 90 %. Remarquons qu'au cours des dernières années, les teneurs en soufre des carburants est-à-dire fortement diminué, ayant pour conséquence une réduction de la teneur en composés soufrés des particules. De plus, et grâce au FAP, les émissions de particules ont chuté ce qui contribue à réduire la fraction solide et à accroître la fraction volatile. La fraction volatile est également affectée par les solutions de post-traitement, comme le DOC (cf. Section 1.1.3), ce dernier ayant pour effet d'oxyder cette fraction volatile. Enfin, le caractère transitoire d'un moteur thermique engendre une grande variabilité dans les propriétés physico-chimiques des suies.

Nom	Abbréviation	Nombre de cycles	Formule brute	Masse [g/mol]	Potentiel cancérrogène
Naphtalène	NAPH	2	C10H8	128	-
Acénaphthylène	ACY	3	C12H8	152	-
Acénaphthène	ACE	3	C12H10	154	Nd
Fluorène	FLUO	3	C13H10	166	-
Phénanthrène	PHEN	3	C14H10	178	-
Anthracène	ANTH	3	C14H10	178	+
Fluoranthène	FLRT	4	C16H10	202	-
Pyrène	PYR	4	C16H10	202	-
Benzo(a)anthracène	B(a)A	4	C18H12	228	++
Chrysène	CHRY	4	C18H12	228	-
Benzo(b)fluoranthène	B(b)F	5	C20H12	252	+++
Benzo(j)fluoranthène	B(k)F	5	C20H12	252	++
Benzo(a)pyrène	B(a)P	5	C20H12	252	+++
Indéno(1,2,3-cd)pyrène	INDENO	5	C22H12	276	++
Benzo(ghi)pérylène	B(ghi)P	6	C22H12	276	-
Dibenzo(ah)anthracène	DB(ah)A	5	C22H14	278	++

Table 1.4 – Liste des HAP classés comme polluants prioritaires par l'US EPA [2]. Potentiel cancérrogène : +++ : très fort ; ++ : fort ; + : faible ; - : nul ; nd : évaluation non disponible.

Bien que la teneur en HAP dans la fraction organique soluble soit faible (de l'ordre de 0,2% de la masse), ces composés font l'objet d'une attention particulière

car certains d'entre eux présentent une très forte toxicité. L'agence de protection de l'environnement américaine (US EPA) a classé 16 HAP en temps que « polluants prioritaires » (cf. Table 1.4). Certains d'entre eux ont un potentiel cancérigène très fort, ce qui fait des nano-particules de suie des objets très nocifs pour la santé humaine : en plus de pénétrer profondément dans l'organisme, les noyaux carbonés servent de vecteurs à de nombreux composés adsorbés.

Enfin, des métaux sont présents dans les gaz d'échappement et peuvent provenir des additifs contenus dans le carburant ou dans le lubrifiant (combustion), ou de l'usure du moteur. Les particules de plus lourdes en contiennent une proportion importante alors que les petites particules en contiennent peu. Les particules issues de l'usure du moteur sont les plus grosses ($>6,8 \mu m$) et contiennent principalement du fer, du nickel, du chrome, de l'aluminium et du cuivre.

Les particules de suie ont donc une nature chimique complexe dont il faudra tenir compte. D'un point de vue expérimental, les suies seront générées par un brûleur de type mini-CAST dont le fonctionnement sera décrit plus tard dans cet exposé.

1.5.2 Organic Carbon (OC), Elemental Carbon (EC) et Black Carbon (BC)

Les particules de suie sont principalement composées de carbone. Dans la littérature, les différents composés carbonés peuvent prendre des noms qu'il convient de définir. Bien que ces termes soient à utiliser avec prudence, les définitions rappelées par Petzold *et al.* [62] semblent consensuelles dans la communauté.

Le *black carbon* (BC) est en premier lieu défini comme une substance absorbant la lumière de façon idéale. Comme une variété importante de processus mène potentiellement à la formation de ce composant, ils sont exclus de la définition du *black carbon*. En effet, bien qu'il soit la plupart du temps formé par la combustion incomplète de matière carbonée, il peut aussi être le produit de la pyrolyse de matière carbonée, et d'autres phénomènes.

Il est par ailleurs caractérisé par une forte absorption de la lumière (longueurs d'onde visibles) et par sa résistance aux transformations chimiques. Selon H. Bertscher [59], le BC est lié aux mesures d'absorbance de la lumière, qui est principalement due à l'*elemental carbon* (EC). Ainsi, le BC est essentiellement constitué d'EC bien que selon les principes de mesures mis en œuvre, les valeurs diffèrent.

L'objectif premier d'une analyse carbone est de déterminer les concentrations en *elemental carbon* (EC) et en *organic carbon* (OC). Selon Schwartz *et al.* [63], l'EC peut être défini comme étant une substance qui ne contient que du carbone et qui n'est pas liée à d'autres éléments. Il peut cependant être présent sous la forme d'une ou plusieurs de ses multiples formes allotropiques, c'est-à-dire sous plusieurs formes cristallines ou moléculaires qui sont par exemple le diamant, les nanotubes de carbone, le graphite ou les fullerènes. La morphologie de l'EC dépend du carburant et des conditions de fonctionnement du moteur [59]. L'EC est donc la partie non-volatile alors que l'OC représente la partie volatile de la matière carbonée. Pour conclure, la teneur totale en carbone (*total carbon*, TC) inclue le *black* (ou *elemental*)

carbon (EC ou BC) et l'*organic carbon* (OC). Les analyses cherchent donc souvent à caractériser le rapport EC/TC ou EC/OC.

1.5.3 Conductivité électrique

En 1996, Dunne *et al.* [64] ont étudié les propriétés électriques de suies de type fullerène⁵. La conductivité σ de ces suies a été évaluée par la méthode de Van der Pauw, qui est une méthode couramment utilisée pour la mesure de résistance de poudres [65]. Deux échantillons de fullerène ont été considérés : l'un recuit à 1273 K pendant sept heures, l'autre non recuit. Les échantillons ont été mis en charge à 1248 kg.cm⁻² afin de réduire la porosité de l'échantillon. Dans ces conditions, la conductivité des échantillons semble suivre un modèle commun :

$$\sigma(T) = \sigma \times \exp\left(-\frac{b}{T}\right) \quad (1.3)$$

Où σ est la conductivité lorsque la température tend vers l'infini et b est une constante dépendant des conditions expérimentales. A température ambiante, pour l'échantillon recuit la conductivité vaut $\sigma = 2 \times 10^{-3} \text{ S.m}^{-1}$ et pour l'échantillon non recuit $\sigma = 5 \times 10^{-4} \text{ S.m}^{-1}$.

Plus récemment, au cours de leur étude sur le capteur de suie résistif, Grondin *et al.* ont mesuré la conductivité des suies issues d'un mini-CAST [30], qui est un générateur de particules de suie sur lequel nous reviendrons dans le paragraphe 2.3. Pour cela, un cylindre en téflon ayant un diamètre interne de 1,2 mm ainsi qu'un piston en laiton relié à un ohmmètre ont été utilisés. Les mesures ont été réalisées à température ambiante. Elles ont révélé une forte dépendance entre la conductivité et la compression des suies. Un autre facteur impactant la conductivité est le point de fonctionnement du brûleur utilisé pour générer les suies (nature chimique).

Aussi, une gamme de conductivité a pu être estimée grâce à cette méthode, pour une charge d'environ 90 kg.cm⁻². Pour des particules dont la distribution de taille est centrée sur le diamètre 50 nm et qui sont constituées de 22 mg/m³ de *carbon black* (point de fonctionnement n°5 du mini-CAST, cf. Section 2.3), une conductivité d'environ 0,3 S.m⁻¹ a été mesurée. En revanche, pour une distribution centrée sur un diamètre de 90 nm et constituée de 143 mg/m³ de *carbon black* (point de fonctionnement n°1 du mini-CAST, cf. paragraphe 2.3), la conductivité mesurée est d'environ 50 S.m⁻¹. Une telle différence avec les résultats de Dunne *et al.* peut être expliquée par la nature différente des particules de suie étudiées et surtout par le fait que la charge appliquée est différente dans les deux études. Or, il s'agit d'un paramètre influençant largement la conductivité car elle modifie la qualité des contacts dans le lit de suie [66].

Enfin, lorsque les suies se déposent sur le capteur de suie, elles sont soumises à la tension de polarisation du capteur. Leur résistance peut être évaluée grâce aux relations :

$$\frac{R(T)}{R_{ref}} = 1 + \alpha \Delta T \quad (1.4)$$

5. Molécule de carbone de la forme d'une sphère, d'un nanotube ou d'un anneau. Ils sont composés de feuilles d'anneaux hexagonaux.

$$\alpha(T) = \frac{\sigma_{ref}}{\alpha \Delta T + 1} \quad (1.5)$$

où R_{ref} est la résistance et σ_{ref} est la conductance des suies mesurées pour une tension de polarisation de référence U_0 (ici 10 V). ΔT est l'écart de température avec celle mesurée pour U_{ref} et α est déterminé expérimentalement et dépend entre autres du matériau et de la taille des particules.

Bien qu'évaluer la conductivité des suies ne semble pas aisé, il ressort de la littérature que contrairement aux métaux, les particules de suie voient leur résistance diminuer lorsque la température augmente. De plus, plus les particules contiennent de *carbon black* plus elles sont conductrices.

1.5.4 Charge électrique

La présence de charges électrostatiques sur les particules issues de combustions est connue depuis longtemps. Dans les années 1980, Kittelson *et al.* [67] émettaient l'idée d'un piège électrostatique après avoir conclu que les particules étaient suffisamment chargées pour être captées par des électrodes soumises à une tension de 10 kV.

Mécanismes de charge

Selon Kittelson *et al.* [67], et Moon *et al.* [68], les principaux mécanismes de charge des particules lors de la combustion sont :

- L'émission thermo-ionique ;
- La charge par diffusion unipolaire (*unipolar diffusion charging*) ;
- La charge par diffusion bipolaire (*bipolar diffusion charging*).

L'émission thermo-ionique a lieu à haute température (1000-3000 K) lorsque l'énergie des électrons dans un solide excède le travail de sortie⁶. Le niveau de charge atteint dépend à la fois de la température des particules et de leur concentration. Ce mode ne conduit qu'à l'arrachement électronique. Il ne résulte donc de ce processus que des particules chargées positivement. Or, les particules réelles portent des charges positives mais aussi négatives.

Le chargement par diffusion unipolaire est dû à la diffusion de nuages d'ions unipolaires (ions d'une seule polarité) vers les particules. Dans une combustion, ceci se produit dans la flamme où a lieu un échange électronique. Ce mode de chargement n'engendre que des particules unipolaires, alors que l'ionisation de la flamme produit aussi des ions bipolaires.

Le chargement par diffusion bipolaire est similaire au cas précédent, mais les ions sont bipolaires (ions de deux polarités). Pour ces deux phénomènes, le paramètre le plus pertinent mis en avant dans les démarches théoriques est le produit concentration ionique-temps, noté N_t en *ion.s.cm⁻³*. Lorsque cette grandeur dépasse un seuil, un équilibre est atteint.

6. Energie minimum nécessaire à l'arrachement électronique (en eV) depuis le niveau de Fermi (niveau de plus haute énergie des électrons) d'un métal jusqu'à l'infini.

Distribution des charges

Ces mécanismes mènent à une distribution gaussienne des charges portées par les particules de suie, appelée équilibre de Boltzmann. N_n est le nombre de particules porteuses de n charges⁷, est donné par la relation [67] :

$$N_n = N_0 \exp \left(- \frac{n^2 e^2}{d_p k_b T} \right) \quad (1.6)$$

Avec N_0 le nombre de particules électriquement neutres, $e (= 4.8 \times 10^{-10} \text{ e.s.u.})$ la charge élémentaire, d_p le diamètre de la particule, k_b la constante de Boltzmann et T la température absolue. La probabilité qu'une particule porte n charge, notée $P(n)$ est représenté sur la Figure 1.22. Les particules les plus fines ($d_p < 100 \text{ nm}$) sont principalement neutres.

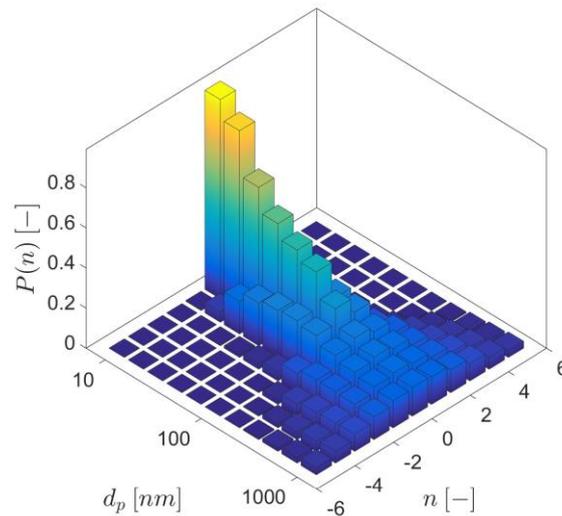


Figure 1.22 – Distribution de Boltzmann en fonction du diamètre de mobilité.

Maricq *et al.* [69] ont utilisé un TDMA (*Tandem Differential Mobility Analyzer*) pour établir la distribution granulométrique des particules en fonction du signe de leur charge. Dans ce dispositif, deux DMA (*Differential Mobility Analyzer*, cf. Section 2.5.1) sont utilisés en série avec un compteur de particules. Le premier DMA classe électriquement l'aérosol échantillonné grâce à une tension électrique constante (positive ou négative) en fonction du signe de la charge des particules que l'on souhaite étudier. Le second DMA scanne la distribution en taille des particules sélectionnées par le premier grâce au compteur. Cette méthode est décrite plus en détail par Kim *et al.* [70].

D'après ces mesures, 60 à 80% des suies générées par une combustion (moteur essence) sont chargées. De plus, la répartition des particules chargées positivement

7. La charge d'une particule est toujours proportionnelle à la charge élémentaire e (expérience de Millikan, prix Nobel 1923).

et négativement est équivalente (cf. Figure 1.23), ce qui conduit au fait que l'aérosol soit globalement neutre, respectant effectivement l'équilibre de Boltzmann.

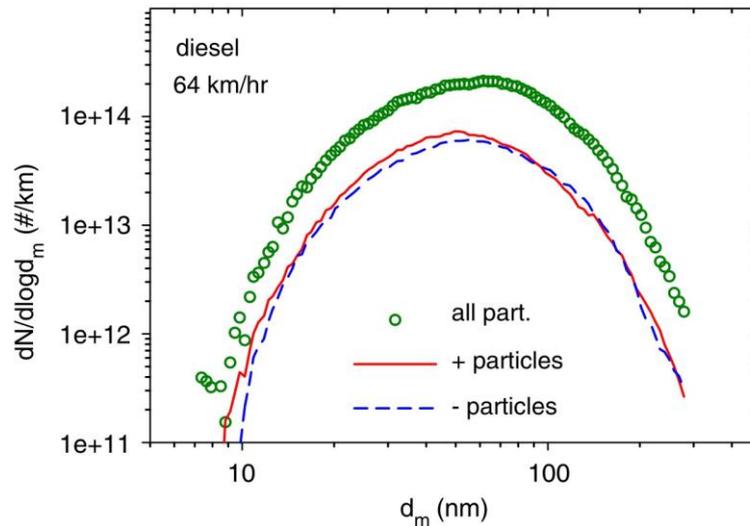


Figure 1.23 – Mesures TDMA : granulométrie pour les particules chargées négativement et positivement pour un moteur Diesel [69].

Enfin, dans une autre étude, Maricq *et al.* [71] montrent que la probabilité qu'une particule porte n charges dépend de sa taille, de son nombre de charges n (ce qui est prédit par l'équilibre de Boltzmann) mais que le carburant l'affecte peu. En effet, des mesures de charges réalisées sur une flamme d'éthane et une flamme d'acétylène présentent des résultats similaires.

1.5.5 Conclusion sur les propriétés physico-chimiques des suies

Après avoir rappelé le mode de formation des particules de suie et les différents phénomènes qui conduisent à leur croissance (coagulation, agglomération), nous avons vu qu'ils menaient à la formation d'agrégats de particules élémentaires. Les particules peuvent être caractérisées par le nombre de sphérules qui les composent N_{pp} , leur dimension fractale D_f et leur pré-facteur fractal k_f . Plusieurs mesures expérimentales ont montré que la dimension fractale est comprise entre 1.69 et 1.83 en fonction des études (protocoles et combustions différents) et que le diamètre des particules primaires varie entre 24.4 nm et 46 nm.

Ces agrégats sont essentiellement composés de carbone de type EC et OC, mais on note également la présence de sulfates, d'eau mais aussi de composés chimiques présents dans le carburant et le lubrifiant et de métaux provenant notamment de l'usure du moteur.

Il a également été vu que la résistance électrique des suies diminue avec l'augmentation de la température, ce qui leur confère un comportement non-métallique. Enfin, la répartition des charges après la combustion suit une répartition de Boltzmann. Le nombre de charges portées par les particules dépend de leur taille et est relativement faible. En effet, la majorité des particules possède un excès ou une lacune d'une ou deux charges élémentaires, voire plus rarement trois ou quatre.

Ajoutons que si l'équilibre de Boltzmann semble proche de la réalité [71] Hogan Jr. *et al.* [72] ont montré que le nombre de charges portées par des particules non-sphériques est supérieur à celui prédit. L'intégration de cette loi pourrait donc être un facteur d'amélioration du présent travail.

1.6 Dynamique et captation des nano-particules

1.6.1 Choisir une approche numérique

Cette section est destinée à formaliser la physique nécessaire à l'étude d'un aérosol composé de nanoparticules. Au voisinage du capteur de suie, les particules sont soumises intrinsèquement à l'action du fluide dans lequel elles sont plongées. Ceci sera pris en compte par la force de traînée, mais aussi par la diffusion brownienne : du fait de leur petite taille, les particules de suie sont sensibles aux chocs des molécules. Ceci confère à leur trajectoire une composante aléatoire. Enfin, comme les nanoparticules sont chargées et qu'elles évoluent dans un champ électrique, elles sont soumises à la force de Coulomb et à la force diélectrophorétique. Avant de parler des forces en elles-mêmes, le milieu dans lequel les particules évoluent est caractérisé.

Dans le but de modéliser la réponse d'un capteur de suie résistif, Fragkiadoulakis *et al.* [73] ont construit un modèle unidimensionnel dont l'entrée est le champ aérodynamique au voisinage des électrodes. Leur modèle intègre les mécanismes de captation en jeu grâce à des efficacités de captation. Une autre façon de modéliser la captation des suies est celle utilisée par Teike *et al.* [35] : l'approche lagrangienne. Cela consiste à prédire la trajectoire des particules en estimant les forces qu'elles subissent.

Ces deux approches sont différentes et ne conduisent pas aux mêmes résultats : la première permet de calculer un taux de captation, alors que la seconde a pour objectif de simuler les mécanismes de dépôt à une échelle plus fine. Dans cette partie, nous nous intéresserons à ces deux méthodes, mais seule l'approche lagrangienne sera étudiée dans la suite.

1.6.2 Continuité du milieu

Pour aborder les phénomènes influençant la dynamique des particules, il est nécessaire de donner une description du milieu dans lequel elles évoluent.

Nombre de Knudsen

Pour caractériser ce milieu, le nombre de Knudsen Kn est utilisé. Il est défini par la relation :

$$Kn = \frac{2\lambda}{d_p} \quad (1.7)$$

Où λ désigne le libre parcours moyen des molécules du gaz et d_p le diamètre de la particule. C'est la distance moyenne que parcourt une particule entre deux chocs.

Aux conditions normales⁸, pour l'air on a $\lambda = 66,4 \text{ nm}$ ⁹. On distingue trois régimes :

- Domaine continu $Kn \ll 1$: les particules de plus grand diamètre peuvent être considérées comme étant submergées dans le fluide porteur de l'aérosol. Par conséquent, les particules sont moins sensibles aux chocs individuels des molécules.
- Domaine intermédiaire (ou transitoire) $Kn \approx 1$: dans ce domaine, les équations régissant la dynamique des particules dans le milieu continu sont corrigées pour analyser leur comportement.
- Domaine moléculaire $Kn \gg 1$: le mouvement des molécules de gaz affecte les trajectoires des particules. La théorie cinétique des gaz est utilisée pour comprendre le comportement des particules.

Dans le cadre de ce travail, le diamètre des particules sera compris entre 10 nm et 1000 nm . Comme le montre la Figure 1.24, le domaine intermédiaire sera considéré ($Kn \in [0.1; 10]$).

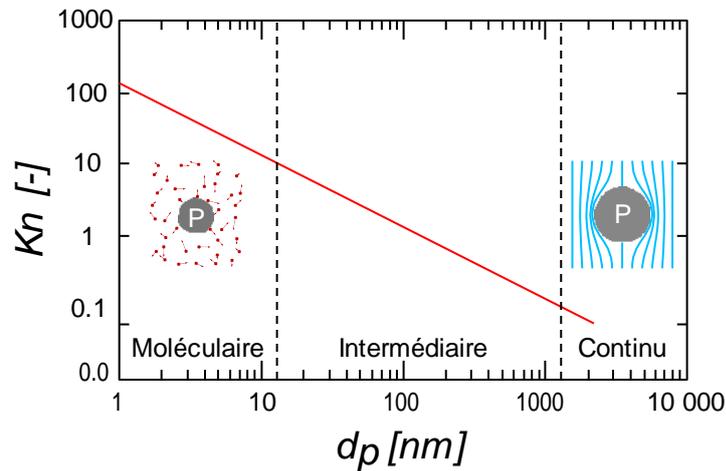


Figure 1.24 – Evolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre des particules, d'après [74].

Coefficient du Cunningham

Les forces qui s'appliquent à une particule dans le régime moléculaire diffèrent, par nature et par formulation, des forces qui s'y appliquent dans le régime continu. La loi de Stokes (qui suppose qu'il n'y ait pas de glissement aux limites d'une particule donc que la particule soit placée dans le régime continu), n'est plus valide dans le régime moléculaire (à gauche sur la Figure 1.24).

En 1910, Cunningham introduit un facteur qui permet de tenir compte de cette différence de régime [75], mais celui-ci n'a été exprimé qu'en 1985 par Allen et Raabe [76] :

$$C_c(Kn) = 1 + Kn \left(a + \beta e^{-\frac{\gamma}{Kn}} \right) \quad (1.8)$$

8. $T_0 = 273,15 \text{ K}$ et $P_0 = 1013 \text{ hPa}$

9. $\lambda = \frac{k_B T}{2\pi d^2 P}$, avec T et P la température et la pression de l'air, k_B la constante de Boltzmann et d le diamètre de la molécule.

Où α , β et γ sont des constantes déterminées expérimentalement. De nombreux articles dans la littérature font état de ces constantes. D'après DeCarlo *et al.* [77], pour des particules solides, les valeurs les plus communément utilisées sont celles mesurées par Allen et Raabe : $\alpha = 1.142$, $\beta = 0.558$ et $\gamma = 0.999$ [76].

1.6.3 Forces et mécanismes aérodynamiques

Par nature, les particules d'un aérosol sont aéroportées et subissent donc l'action de l'air. Cette action peut être à l'échelle moléculaire ou à l'échelle macroscopique. La nature de l'écoulement (laminaire ou turbulent) a également un impact sur le dépôt des particules et cela peut être modélisé par des coefficients qui seront introduits dans un premier temps et décrits plus en détail dans les paragraphes qui suivent.

Force de traînée

La traînée est la force exercée par l'air sur une particule en mouvement par rapport à un fluide. On parle alors de la vitesse relative de la particule par rapport au fluide, qui est notée v_r . Pour une particule dans le régime continu, la loi de Stokes permet de calculer cette force :

$$F_{drag} = 3\pi\eta_f d_p v_r \quad (1.9)$$

Où η_f est la viscosité dynamique du fluide. Cependant, lorsque le régime est dit moléculaire, le facteur de correction de Cunningham doit être intégré à cette expression. La dimension fractale des particules a également un impact sur la force de traînée qui peut être modélisée par le facteur de forme dynamique, noté x .

$$F_{drag} = x \frac{3\pi\eta_f d_p}{C_c(d_p)} v_r \quad (1.10)$$

x peut être utilisé pour tenir compte de la non-sphéricité d'une particule. Ce coefficient a d'abord été introduit par Fuchs en 1964 [78]. Il se définit par le rapport entre la force de traînée exercée sur la particule non-sphérique (p) F_{drag}^p et la force de traînée exercée - dans les mêmes conditions - sur une particule sphérique de volume équivalent (ve) F_{drag}^{ve} [79] :

$$x = \frac{F_{drag}^p}{F_{drag}^{ve}} \quad (1.11)$$

Dans la plupart des cas, le facteur de forme dynamique excède l'unité. Il se rapproche de l'unité lorsque la particule tend vers la sphère. Comme le rappelle DeCarlo *et al.* [77], l'orientation de la particule par rapport à la direction du fluide a un impact sur la valeur du facteur de forme. Enfin, le régime dans lequel évolue la particule influence x comme le signale Dahneke *et al.* [80] et Cheng *et al.* [81]. On peut alors considérer qu'une unique particule possède plusieurs facteurs de forme : x_c pour le régime continu, x_v pour le régime moléculaire (*vacuum*) et $x_i(Kn)$ pour le régime intermédiaire.

$$x_i(Kn) = x_c \frac{C_c(d_{ve})}{C_c \frac{x_v}{x_c} d_{ve}} \quad (1.12)$$

Une expression du facteur de forme, rappelée par DeCarlo *et al.* est donnée ci-dessus dans le cas d'un régime transitoire. Cette relation est d'autant plus importante que les particules étudiées ($d_p \in [10; 100] \text{ nm}$) se situent dans un régime intermédiaire.

Diamètre aérodynamique

Le diamètre aérodynamique, noté d_a est le diamètre d'une sphère de densité standard ayant la même vitesse de dépôt que la particule considérée. Par conséquent, le diamètre aérodynamique dépend du régime de l'écoulement, et donc du nombre Kn . Selon Hinds [79], le diamètre aérodynamique s'exprime :

$$d_a = d_{ve} \frac{\rho_p C_c(d_{ve})}{x \rho_0 C_c(d_a)} \quad (1.13)$$

Où d_{ve} représente le diamètre de volume équivalent de la particule, ρ_p sa densité et ρ_0 une densité standard (arbitraire). On remarque que la forme de la particule, représentée par la grandeur x , affecte le diamètre aérodynamique. De plus, et comme nous l'avons établi plus tôt, le diamètre aérodynamique est dépendant du régime de l'écoulement. En effet, l'expression de d_a dépend du nombre de Knudsen au travers des coefficients de correction de Cunningham. C'est ce qui est illustré dans la Figure 1.25, qui est basée sur la relation (1.13).

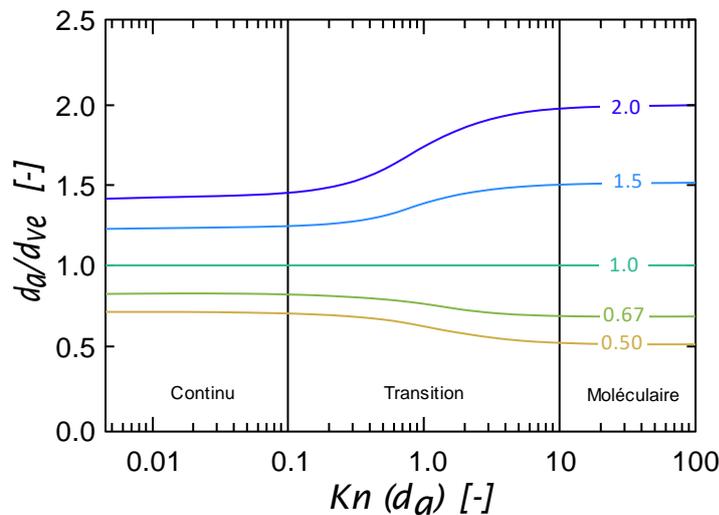


Figure 1.25 – Rapport $\frac{d_a}{d_{ve}}$ en fonction du régime de l'écoulement et pour différents ratios $\frac{\rho_p}{\rho_0 X_c}$ [77].

Ainsi, dans le régime continu, le diamètre aérodynamique tend vers $d_{a,c} = d_{ve} \frac{\rho_p}{\rho_0 X_c}$. Dans le régime moléculaire : $d_{a,v} = d_{ve} \frac{\rho_p}{\rho_0 X_v}$.

Dépôt inertiel

Le dépôt inertiel concerne essentiellement les particules les plus massives. En effet, ce mode de dépôt repose sur le fait que lorsque l'inertie d'une particule excède

un seuil, cette dernière se retrouve incapable de suivre les lignes de courant et est alors susceptible d'entrer en collision avec une paroi [79]. C'est le principe des impacteurs, qui sont des dispositifs permettant de laisser passer les particules les plus fines en utilisant une plaque d'impaction pour collecter les particules dont l'inertie excède un seuil souhaité. Une façon de modéliser ce phénomène est de calculer la trajectoire des particules en utilisant simplement un bilan des forces aérodynamiques (suivi lagrangien).

Une autre façon de modéliser le dépôt inertiel des particules sur une surface est d'utiliser une efficacité d'impaction E_I qui est une fonction du nombre de Stokes. Ce nombre est sans dimension et est utilisé en dynamique des fluides pour caractériser le comportement d'une particule. C'est le rapport entre l'énergie cinétique de la particule et l'énergie dissipée par frottement avec le fluide porteur.

$$Stk = \frac{\rho_p d^2 u C_c}{18 \nu_f L} \quad (1.14)$$

Où u est la vitesse du gaz (en $m \cdot s^{-1}$), ν_f la viscosité dynamique du gaz (en $Pa \cdot s$) et L la longueur caractéristique (en m) de la zone d'impaction. L'efficacité d'impact peut alors s'écrire [73] :

$$E_I = \frac{\pi}{2} Stk \quad (1.15)$$

1.6.4 Electrophorèse

L'électrophorèse est décrite comme étant la migration de particules chargées $n_p e$ dans un champ électrique E [82]. Ce phénomène a été pour la première fois observé par Ferdinand Frederic Reuss en 1807. C'est en soumettant une suspension colloïdale d'argile dans de l'eau à un champ électrique constant qu'il observa une migration des particules d'argile en suspension. Aujourd'hui, l'une des principales applications de l'électrophorèse est l'électrophorèse capillaire qui consiste à séparer des macromolécules en fonction de leur rapport charge/taille. L'électrophorèse est aussi utilisée par certains appareils d'analyse tels que le *Differential Mobility Analyzer* (cf. Section 2.5.1).

Les capteurs de suie, munis d'électrodes, sont générateurs d'un champ électrique E à leur voisinage. Comme nous l'avons vu plus haut, les particules issues d'une combustion sont électriquement chargées et sont porteuses d'un excès ou d'un défaut électronique. Ce n'est donc pas une suspension colloïdale d'argile dans de l'eau mais un aérosol de particules de suie dans de l'air à laquelle un champ électrique est appliqué dans cette étude.

Force de Coulomb

L'électrophorèse peut être modélisée par l'action d'un champ électrique sur des charges ponctuelles. A ce titre, les lois de l'électrostatique peuvent être appliquées, ignorant ainsi la composante magnétique de la force de Lorentz qui s'applique à la particule ([35, 73]). Ceci s'explique par le fait que l'aérosol est dilué et que l'on suppose que la concentration en particules chargées n'est pas suffisamment importante

et que la charge qu'elles portent est trop faible pour que leur déplacement soit à l'origine d'un champ magnétique.

La force agissant sur chacune des particules est donnée par la relation :

$$F_E = neE \quad (1.16)$$

Si une particule est soumise à une telle force, elle atteindra une vitesse finale \underline{v}_e .

$$\underline{v}_e = \frac{neC_c(d_p)}{3\pi\eta_f d_p} E = Z_\rho E \quad (1.17)$$

Où Z_ρ désigne la mobilité électrique [79].

Diamètre de mobilité électrique

Grâce à la définition de la mobilité électrique, et en supposant que les particules et la sphère de volume équivalent (*ie.* de diamètre d_{ve}) aient la même charge, une relation peut être établie entre le diamètre de volume équivalent d_{ve} et le diamètre de mobilité électrique d_m :

$$\frac{d_m}{C_c(d_m)} = \frac{d_{ve} \chi_t(K\eta)}{C_c(d_{ve})} \quad (1.18)$$

Le diamètre de mobilité électrique définit, pour une particule donnée, le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de migration dans un champ électrique constant, que cette particule.

Pour une particule sphérique, $d_m = d_{ve} = d_p$. Pour une particule non sphérique, d_m est toujours supérieur à d_{ve} car le facteur de forme d'une particule est toujours supérieur à 1 et que le facteur de correction de glissement de Cunningham $C_c(d)$ est une fonction monotone décroissante. Enfin, la relation entre le diamètre de mobilité et le diamètre aérodynamique est, d'après McMurry *et al.* [83] :

$$\frac{d^2}{C_c(d_a)} = \frac{1}{\chi} \frac{\rho_p}{\rho_0} \frac{2}{d_{ve}} C_c(d_{ve}) = \frac{\rho_{eff}}{\rho_0} \frac{2}{d_m} C_c(d_m) \quad (1.19)$$

Où ρ_p est la masse volumique des particules de suie (« *bluk* » *density*) et ρ_{eff} est la masse volumique effective des agrégats associé au diamètre de mobilité d_m .

1.6.5 Diélectrophorèse

La diélectrophorèse (DEP) est le mouvement résultant de l'action d'un champ électrique non-uniforme E sur un corps. Un aspect remarquable de la force diélectrophorétique (parfois appelée force de dipôle), est qu'elle agit sur les particules chargées comme sur les particules neutres, ce qui n'est pas le cas de la force de Coulomb. Afin d'explicitier l'expression analytique de la force diélectrophorétique, nous mettrons en évidence le mécanisme qui est à l'origine de la DEP, pour mieux comprendre en quoi elle est impliquée dans la captation des particules de suie.

Expression de la force diélectrophorétique

Afin d'établir une expression de la force diélectrophorétique, Ronald Pethig rapporte plusieurs étapes [84]. La première est de déterminer le moment dipolaire d'une sphère de permittivité absolue ϵ_p , polarisée par un champ électrique uniforme initial E dans un milieu de permittivité absolue ϵ_m . Enfin, un bilan des forces électrostatiques permet d'obtenir l'expression de la force dans un champ électrique non-uniforme.

Polarisation d'une particule sphérique Le système devra respecter les règles élémentaires pour la formulation d'un problème d'électrostatique :

1. De part et d'autre de la surface de la sphère, le produit $\epsilon \frac{\partial V}{\partial r}$ est constant ;
2. Le potentiel électrique V est continu en tout point ;
3. L'équation de Laplace $\Delta V = 0$ est vraie en tout point ;
4. A l'infini, le potentiel vaut $V = -|E|x$.

Dans la suite, nous noterons $E = |E|$.

En supposant que la sphère soit constituée d'un matériau diélectrique homogène et isotrope, elle est polarisée de façon homogène par le champ électrique E . Ceci génère un champ électrique interne que l'on note E_{int} . Le potentiel dans la sphère vaut alors :

$$V_{int} = -E_{int}x = -E_{int}r \cos \theta \quad (1.20)$$

L'hypothèse de la sphéricité de la particule permet d'affirmer que le moment dipolaire $p = kE$ est parallèle avec le champ électrique initial E . On peut alors utiliser le théorème de superposition pour calculer le champ électrique modifié par la présence de la particule, qui sera noté E_{ext} . Son potentiel est exprimé par :

$$V_{ext} = -Ex + E \frac{k}{4\pi\epsilon_m r^2} \frac{x}{r} = -E \cos \theta \left(r - \frac{k}{4\pi\epsilon_m r^2} \right) \quad (1.21)$$

Les conditions aux limites (conditions 2 et 3) permettent d'écrire deux égalités pour $r = r_p$:

$$V_{int} = V_{ext} \quad (1.22)$$

$$\epsilon_p \frac{\partial V_{int}}{\partial r} = \epsilon_m \frac{\partial V_{ext}}{\partial r} \quad (1.23)$$

De l'équation (1.22) on tire que :

$$E_{int} = E \left(1 - \frac{k}{4\pi\epsilon_m r_p^3} \right) \quad (1.24)$$

Et de la relation (1.23) on a :

$$\epsilon_p E_{int} = \epsilon_m E \left(1 + \frac{2k}{4\pi\epsilon_m r_p^3} \right) \quad (1.25)$$

Enfin, à partir des relations (1.24) et (1.25) on peut calculer k :

$$k = 4\pi\epsilon_m r_p^3 \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m} \quad (1.26)$$

Ce qui permet d'obtenir l'expression du moment dipolaire $p = kE$.

Bilan des forces Considérons maintenant le dipôle généré par la polarisation de la particule placée dans un champ électrique non-uniforme E . Soit P , une particule porteuse de deux charges opposées q et $-q$, et de centre M . Elle a un moment dipolaire $\underline{p} = q\underline{a} = kE$, où \underline{a} est le vecteur dirigé de la charge négative vers la charge positive (cf. Figure 1.26).

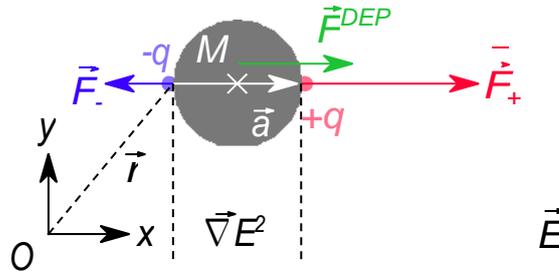


Figure 1.26 – Le cas du dipôle.

Le champ n'étant pas constant, la force de Coulomb agissant sur chacun des pôles est différente en valeur absolue. Il s'ensuit que la résultante des forces vaut :

$$\underline{F}^{DEP} = \underline{F}_+ + \underline{F}_- = q \underline{E}(r + \underline{a}) - E(r) \quad (1.27)$$

Ainsi, en projetant cette force sur l'axe Ox :

$$F_{DEP}^x = q [E_x(r_x + a_x) - E_x(r_x)] \approx q \frac{\partial E_x}{\partial x} a_x \quad (1.28)$$

En répétant ce calcul sur la projection sur l'axe Oy , il vient que :

$$\underline{F}^{DEP} = \underset{x}{F_x^{DEP}} \underline{e}_x + \underset{y}{F_y^{DEP}} \underline{e}_y \approx q \left(\frac{\partial E_x}{\partial x} a_x + \frac{\partial E_y}{\partial y} a_y \right) \quad (1.29)$$

L'équation (1.29) fait alors apparaître l'expression du gradient du champ électrique, ce qui mène à l'expression finale de la force diélectrophorétique pour un dipôle :

$$\underline{F}^{DEP} \approx q(\underline{a} \cdot \nabla) \underline{E} \quad (1.30)$$

Il est possible d'écrire la relation (1.30) en fonction du moment dipolaire \underline{p} et avec la relation (1.26) :

$$\underline{F}^{DEP} \approx (\underline{p} \cdot \nabla) \underline{E} = 2\pi\epsilon_m r^3 \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m} \nabla E^2 \quad (1.31)$$

Où $\frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m}$ est le facteur de Clausius-Mossotti, noté f_{CM} .

Facteur de Clausius-Mossotti Lorsque le champ électrique est alternatif (AC), le facteur de Clausius-Mossotti peut s'exprimer en fonction de la permittivité complexe des matériaux :

$$f^{CM} = \frac{\epsilon_p - \epsilon_m}{\epsilon_p + 2\epsilon_m} \quad (1.32)$$

Comme il s'agit d'un nombre complexe, le facteur de Clausius-Mossotti peut aussi être écrit dans sa forme algébrique : $f_{CM} = Re(f_{CM}) + jIm(f_{CM})$. Les parties imaginaire et complexe s'expriment alors par :

$$Re \ f_{CM} = \frac{(\sigma_p - \sigma_m)(\sigma_p + 2\sigma_m) + \omega^2(\varepsilon_p - \varepsilon_m)(\varepsilon_p + 2\varepsilon_m)}{(\sigma_p + 2\sigma_m)^2 + \omega^2(\varepsilon_p - \varepsilon_m)^2} \quad (1.33)$$

$$Im \ f_{CM} = \frac{-3\omega(\varepsilon_m\sigma_p - \varepsilon_p\sigma_m)}{\omega^2(\varepsilon_p + \varepsilon_m)^2 + (\sigma_p + 2\sigma_m)^2} \quad (1.34)$$

Par ailleurs, la valeur instantanée du champ électrique vu par la particule à un instant t peut s'écrire $E(\underline{r}, t) = Re(E(\underline{r})e^{j\omega t})$ ¹⁰, où j est le vecteur imaginaire¹¹ et ω est la pulsation. D'après les équations (1.26) et (1.31), l'expression de la force dans le cas du phénomène AC-DEP devient :

$$F^{DEP} \approx 2\pi\varepsilon_m r^3 Re \left(f_{CM} \nabla - E^2 \right) \quad (1.35)$$

Par ailleurs, pour des fréquences élevées :

$$\lim_{\omega \rightarrow +\infty} Re \ f_{CM} = \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \quad (1.36)$$

Et pour des fréquences faibles :

$$\lim_{\omega \rightarrow 0} Re \ f_{CM} = \frac{\sigma_p - \sigma_m}{\sigma_p + 2\sigma_m} \quad (1.37)$$

Cette dernière relation est par conséquent celle qui est appliquée dans de nombreux travaux de recherche [85, 86, 87, 88] pour étudier le phénomène DC-DEP. Nous verrons dans la section 4.5.1 que le facteur de Clausius-Mossotti sera considéré comme étant égal à un dans le cas d'un aérosol de suie.

Enfin, la DEP peut être attractive ou répulsive, en fonction du signe du facteur $Re \ f_{CM}$. Dans le cas particulier de la DC-DEP, si $\sigma_p > \sigma_m$, les particules sont attirées par les zones ayant de fortes densités de champ électrique car leur sens et leur direction seront ceux de $\nabla |E|^2$ (cf. équation (1.35)). Il sera alors question de DEP positive et dans le cas contraire on parlera de DEP négative.

Découverte et utilisation de la diélectrophorèse

Les investigations autour de la diélectrophorèse sont plus anciennes que le terme lui-même. En effet, la relation (1.31) avait déjà été établie dans les années 1920 sur la base des théories de Maxwell [89]. La première application industrielle de forces pondéromotrices¹² générant la migration de sphères diélectriques remonte à la même décennie. H. S. Hatfield [90] semble avoir été le premier à utiliser ce phénomène, dans le cadre du traitement de minerais d'étain. La cassitérite, contenant l'étain, est en effet souvent associée à du quartz dont il faut la séparer.

10. $E(\underline{r})e^{j\omega t} = E(\underline{r})(\cos \omega t + j \sin \omega t)$

11. $j = -1$

12. Mouvement de particules chargées électriquement, globalement ou localement.

Le mot « diélectrophorèse » n'émergera des travaux de Herbert A. Pohl que dans les années 1950 [85] dans le cadre de ses travaux sur les suspensions de cellules ou d'organites¹³. Toutefois, la DEP ne rencontrera un réel succès que dans les années 1970, lors de la parution du livre *Dielectrophoresis : The behavior of neutral matter in non-uniform electric fields* [91]. Son application concrète est encore plus récente puisque c'est dans les années 2000 que le nombre d'articles scientifiques traitant de la DEP augmente brusquement [84]. Ce regain d'intérêt s'explique par l'évolution technique permettant la micro-fabrication d'électrodes [85].

Aujourd'hui, la DEP est très utilisée en biologie pour manipuler des cellules car des corps électriquement neutres y sont sensibles. Toutefois, une large gamme de particules peut être manipulée par le biais de la DEP, telles que des particules de polymère, de métal, des bactéries, des virus, des molécules d'ADN ou encore des protéines [85]. Ici, nous nous intéresserons à l'action de la DEP sur les particules de suie, sujet absent dans la littérature portant sur le capteur résistif.

La diélectrophorèse est utilisée pour simuler et comprendre la trajectoire de particules aéroportées dans différents domaines. Les filtres à électret¹⁴ mettent en jeu des champs électriques inhomogènes suffisamment important pour polariser les particules et les faire migrer par diélectrophorèse. Romay *et al.* [92] ont mis en évidence l'importance de la diélectrophorèse pour des particules dont le diamètre est compris entre 100 – 500 nm. En deçà de 100 nm, la force de Coulomb est prédominante dans leurs conditions expérimentales. Plus récemment, la diélectrophorèse a été utilisée pour simuler le transport d'un aérosol dans un filtre à électret [93] afin de calculer l'efficacité de filtration. Les travaux de Chen *et al.* [87] montrent que des particules atmosphériques peuvent être collectées par un précipitateur fonctionnant en courant alternatif, mettant en jeu l'AC-DEP. Nous pouvons également rapporter le travail de Wasisto *et al.* [26] sur des capteur à résonance de levier, dont la collecte de particules est améliorée par un phénomène de diélectrophorèse.

1.6.6 Thermophorèse

La thermophorèse (aussi appelée thermodiffusion), fait référence à l'influence d'un gradient de température sur la dynamique de particules en suspension dans un fluide. Toutefois, le terme de thermophorèse fait la plupart du temps référence à un aérosol.

Echelle microscopique

A l'échelle microscopique, la thermophorèse est décrite comme le gradient de quantité de mouvement transféré à une particule par les molécules du gaz dans lequel elle est plongée. A cette échelle, un gradient de température peut être décrit comme un gradient de quantité de mouvement des molécules. Ainsi, comme le représente la Figure 1.27, ce gradient de température (thermo-) génère une migration (-phorèse) de particules dans un fluide. Une façon générale d'écrire la force de thermophorèse

13. Eléments constitutifs d'une cellule permettant son bon fonctionnement.

14. Un électret est un matériau diélectrique qui « reste électrisé de façon permanente après avoir été soumis à un champ électrique temporaire » d'après le dictionnaire Larousse en ligne.

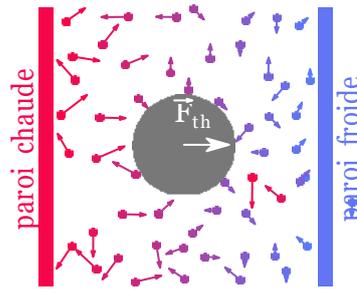


Figure 1.27 – Thermophorèse à l'échelle microscopique, d'après [74].

est d'intégrer la quantité de mouvement $m\underline{v}$ totale transférée à une particule par les molécules de gaz qui l'entourent. On a alors [94] :

$$F_{th} = - \int dS \left(\int m\underline{v}(\underline{v} \cdot \underline{n}) f^- d\underline{v} + \int m\underline{v}(\underline{v} \cdot \underline{n}) f^+ d\underline{v} \right) \quad (1.38)$$

Avec \underline{v} la vitesse des molécules, $d\underline{v}$ l'élément de volume de l'espace des vitesses \underline{v} , \underline{n} le vecteur unitaire normal à la surface de la particule et dirigé vers l'extérieur. Les fonctions f^- et f^+ sont les fonctions de distribution des vitesses des molécules du gaz à la surface de la particule, l'une correspondant aux molécules quittant la surface, l'autre à celles impactant la surface. Bien que cette expression soit valable pour toutes les classes de taille de particules, il est difficile de connaître les expressions des fonctions de distribution des vitesses.

Echelle macroscopique

En pratique, la force de thermophorèse est calculée à l'échelle de la particule. Pour des particules sphériques, dans le domaine moléculaire (*ie.* $Kn \gg 1$) et pour un gaz monoatomique, l'expression de la force est donnée par [95] :

$$F_{th} = K_{th} \nabla T \quad (1.39)$$

Où K_{th} est appelé coefficient thermophorétique et s'exprime, d'après Talbot *et al.* [96], par :

$$K_{th} = \frac{2C_s C_c}{1 + 3C_m Kn} \times \frac{k_g/k_p + C_t Kn}{1 + 2k_g/k_p + 2C_t Kn} \quad (1.40)$$

Avec k_g la conductivité thermique de l'air et k_p celle de la particule. Les coefficients C_m , C_t et C_s sont liés aux facteurs d'accommodation α_m et α_t . Les facteurs d'accommodation décrivent la façon dont les molécules du gaz sont réfléchies par les parois solides de la particule.

- $\alpha_t = 1$, il y a accommodation complète. La réflexion est uniquement diffuse et la molécule est en équilibre thermique avec la surface de la particule lors de la réflexion ;
- $\alpha_t = 0$, la réflexion est spéculaire et il n'y a pas d'échange thermique entre la molécule et la surface de la particule.

Les expressions des coefficients C_m , C_t et C_s ne seront pas détaillées ici. Notons toutefois que pour des particules de suie, Fragkiadoulakis *et al.* [73] ont utilisé les valeurs $C_s = 1.17$, $C_t = 2.18$ et $C_m = 1.14$.

1.6.7 Diffusion brownienne

Ce phénomène a été découvert au microscope par le botaniste R. Brown alors qu'il observait des petites particules de pollen en suspension dans l'eau. Dans le cas général, le mouvement brownien est une description mathématique du mouvement aléatoire d'une particule (ou molécule) immergée dans un fluide.

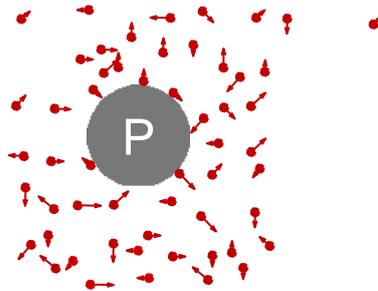


Figure 1.28 – Interactions particule-molécule.

Si la particule est suffisamment fine ($d_p < 500 \text{ nm}$ pour la suie), elle est sensible à l'interaction entre sa surface et les autres molécules présentes dans le milieu. On dit qu'il s'agit d'une particule « brownienne » (cf. Figure 1.28).

Si c'est dans la seconde moitié du XIX^{ème} siècle qu'apparaît l'idée selon laquelle le mouvement brownien est une conséquence du mouvement des molécules du fluide, ce n'est qu'au début du XX^{ème} siècle qu'une explication théorique a été apportée à ce phénomène par A. Einstein (1905). Ce dernier obtient d'ailleurs une relation entre le coefficient de diffusion brownienne et les propriétés de la matière :

$$D = \frac{k_b T_f C_c(d_p)}{3\pi\eta_f d_p} \quad (1.41)$$

Avec R la constante des gaz parfaits, N_A le nombre d'Avogadro, k_b la constante de Boltzmann et r_p le rayon de la particule brownienne. Cette explication théorique fut complétée plus tard par P. Langevin en 1908.

L'équation de Langevin

Lorsqu'elle n'est soumise à aucune autre force que celle des molécules du gaz environnant, une particule a un mouvement qui est dit brownien et qui peut être décrit par l'équation de Langevin :

$$m_p \frac{dv}{dt} = -m_p \gamma v + F_L \quad (1.42)$$

Où $-m_p \gamma v$ représente la force de traînée (γ étant le coefficient de friction) et F_L est un terme aléatoire dont les propriétés statistiques sont clairement définies. Ces deux forces représentent deux conséquences d'un même phénomène physique. En résolvant analytiquement l'équation de Langevin, on peut exprimer la vitesse d'une particule soumise à F_L .

$$\underline{v} = \underline{v}_0 e^{-\gamma t} + \frac{1}{m_p} \int_0^t \underline{F}_L(t^1) e^{-\gamma(t-t^1)} dt^1 \quad (1.43)$$

Pour $t \in \mathbb{R}_+$ et avec $\underline{v}(t=0) = \underline{v}_0$.

Échelles de temps

Plusieurs échelles de temps doivent être définies lorsque l'on aborde le phénomène de la diffusion brownienne. Le temps de corrélation (noté τ_c) correspond à l'ordre de grandeur du temps moyen séparant deux collisions successives entre les molécules du fluide dans lequel est immergée la particule, et la particule elle-même. Ce temps dépend du fluide et de la température mais l'ordre de grandeur est en général $\tau_c \approx 10^{-12}$ s.

On définit également le temps de relaxation τ_B de la vitesse moyenne (vers 0) tel que $\langle \underline{v}(t) \rangle = \underline{v}_0 e^{-\gamma t} = \underline{v}_0 e^{-\frac{t}{\tau_B}}$.

Enfin, on définit le temps de relaxation de la particule brownienne elle-même, c'est-à-dire le temps mis par la particule pour diffuser son propre rayon :

$$\tau_r = \frac{r_p^2}{D} \quad (1.44)$$

En général, $\tau_c \ll \tau_B \ll \tau_r$. Enfin, le temps moyen entre deux collisions est donné par [79] :

$$\Delta t = \frac{D}{c_{therm}^2} \frac{8}{\pi} \quad (1.45)$$

où c_{therm} est la vitesse thermique moyenne d'une particule :

$$c_{therm} = \frac{\sqrt{48 k_b T_f}}{\pi^2 \rho_p d^3} \quad (1.46)$$

Par exemple, le pas de temps utilisé pour calculer la trajectoire d'une particule de diamètre 100 nm est de 5.1×10^{-8} s dans les conditions de l'échappement moteur.

Force stochastique de Langevin

La diffusion brownienne peut être modélisée par une force aléatoire résultant de l'interaction entre la particule et les molécules du gaz environnant. C'est ainsi qu'elle est présentée dans les travaux récents de Teike *et al.* [35] et de Lee *et al.* [28], mais aussi dans le guide utilisateur du code ANSYS Fluent :

$$\underline{F}_L(t) = \zeta \frac{1}{\sqrt{246 \nu k T}} \sqrt{\pi \rho_f d^5 \left(\frac{\rho_p}{\rho_f} \right)^2 C_c(d_p) \Delta t} \quad (1.47)$$

Où ρ_p est la masse volumique de la particule. ζ correspond à un vecteur de composantes aléatoires dont la distribution des valeurs est gaussienne et centrée en 0. La loi statistique à laquelle la norme du vecteur obéit doit être $P(\zeta) = e^{-\frac{\zeta^2}{0.2}}$.

1.6.8 Conclusion sur les forces appliquées aux particules

Cette partie fait l'inventaire des phénomènes influençant la dynamique des particules de suie dans un aérosol, mais aussi des phénomènes de captation. Les particules de taille nanométrique se déplaçant dans l'air se trouvent dans un régime intermédiaire ou moléculaire. Ceci est modélisé par le facteur de correction de Cunningham, noté $C_c(Kn)$. De plus, dans un tel régime, les plus petites particules peuvent être soumises à la diffusion brownienne, représentée dans différents travaux [35, 28] par une force appliquée aux particules.

D'autres phénomènes sont de première importance concernant la dynamique et la collecte des particules par une électrode. L'électrophorèse est le phénomène de migration induit par la force de Coulomb appliquée aux particules chargées présentes dans l'aérosol. Plusieurs travaux montrent son importance dans le contexte du capteur résistif [30]. De plus, l'influence de certains paramètres électrostatiques, de dépôt et aérodynamiques a été étudiée numériquement pour expliquer la formation des ponts de suie. Teike *et al.* [35] concluent entre autres que le temps de construction d'un pont diminue avec l'augmentation de la tension de polarisation. Néanmoins, certains paramètres ne sont pas pris en compte dans leur modèle, tels que l'influence des forces aérodynamiques et thermophorétiques sur des particules non-sphériques. D'ailleurs, le modèle ne permet pas de simuler la formation complète d'un pont : seule la formation de dendrites est modélisée.

Une autre force appliquée aux particules de suie est susceptible de modifier leur dynamique : la thermophorèse. Cette force due aux gradients de température a été utilisée par certains auteurs [36, 97] pour augmenter le taux de captation des suies. Des précipitateurs thermophorétiques composés d'une surface chaude et d'une surface froide (sur laquelle est positionné le capteur) sont basés sur ce principe.

La diélectrophorèse est une force induite par l'inhomogénéité du champ électrique dans lequel se déplace une particule conductrice. En se polarisant, elle devient sujette aux forces électrostatiques agissant sur ses pôles. Ce mécanisme génère un moment et une migration. L'intensité de la force dépend fortement du diamètre de la particule (proportionnelle au cube du diamètre). Pour des particules aéroportées plus conductrices que le gaz porteur, les zones de haut gradient de champ électrique sont attractives [84]. Enfin, cette force a la même direction que la particule soit chargée (positivement ou négativement) ou neutre.

Enfin, la morphologie des particules influence l'ensemble de ces forces. De nombreux articles mentionnent l'impact de la forme fractale des particules sur les forces aérodynamiques [77], mais aussi sur la vitesse thermophorétique [98]. Bien que cette morphologie ne soit pas toujours prise en compte dans les modèles de dépôt des particules sur les capteurs de suie résistifs [73], une meilleure compréhension de son impact sur la formation des ponts de suie peut constituer une approche originale.

1.7 Synthèse bibliographique

Après avoir rappelé le contexte environnemental, l'état de l'art des technologies de captation des particules de suie a été présenté. De nombreuses technolo-

gies utilisent des mécanismes de captation d'aérosols basés sur un champ électrique (électrofiltres, capteurs Pegasor, capteurs basés sur la charge électrique, etc.), ce qui constitue une base bibliographique relativement fournie. L'étude du capteur résistif requiert également des connaissances sur les particules de suie et il est nécessaire de connaître leurs propriétés physiques et leur nature chimique pour interpréter son signal. Les axes « technologies de captation » et « connaissances des suies » sont donc au centre de la recherche bibliographique présentée dans ce chapitre.

1.7.1 Caractéristiques d'un aérosol de suie

Dans le but d'améliorer la compréhension des mécanismes de formation des ponts de suie, il est primordial de caractériser avec précision les particules de suie générées par une combustion. Les particules couvrent des gammes de tailles relativement larges (de quelques nanomètres à quelques micromètres), et ceci est dû à leur mode de formation : les particules générées par le mode de nucléation sont les plus fines et elles prennent la forme de particules sphériques élémentaires dont le diamètre est d'environ 20 nm. Après leur formation, les particules sont susceptibles de coaguler et de s'agglomérer, générant des particules plus massives prenant la forme d'agrégats fractals. Ces agrégats peuvent être définis par différentes grandeurs mathématiques (dimension fractale D_f , pré-facteur fractal k_f et nombre de sphérules N_{pp}) qui varient selon le carburant et le mode de formation. De nombreuses techniques numériques permettent de simuler la formation de tels agrégats de façon plus ou moins pertinente. Certaines méthodes se basent sur les réactions chimiques et les phénomènes physiques qui régissent la formation et l'agglomération des particules [41]. D'autres, davantage utilisées par les motoristes, sont des corrélations semi-empiriques puisqu'elles considèrent une distribution de particules connues (connaissance des paramètres fractals) et permettent de générer de façon aléatoire des arrangements de particules [99].

Les charges portées par les particules contribuent à leur sensibilité au champ électrique généré par les électrodes, et donc au phénomène de captation par électrophorèse. Après la combustion, la distribution des charges suit l'équilibre de Boltzmann [67]. Le nombre de charges portées par les particules est une fonction de leur taille et varie, pour une combustion de type Diesel, entre une et quatre charges élémentaires e (en valeur absolue). Une fois que les suies se sont déposées sur les électrodes et y ont formé des ponts, la réponse du capteur change. La conductivité des suies ainsi déposées dépend de la température : elle diminue lorsque la température augmente. Son comportement a été évalué grâce à la technique de Van der Pauw.

1.7.2 Contexte technologique

Actuellement, les capteurs embarqués (OBD) ne sont pas sensibles au nombre de particules, à l'exception du capteur basé sur la charge électrique de type Pegasor [100]. Néanmoins, ce type de capteur est à la fois onéreux et volumineux, ce qui est un inconvénient majeur pour une application de type OBD. Les capteurs accumulatifs sont quant à eux à la fois moins onéreux et moins encombrants. Cependant, l'état actuel des connaissances ne permet pas d'estimer le franchissement d'un seuil

de concentration en nombre de particules. La littérature fait principalement état d'études portées sur l'exploration des paramètres affectant la réponse du capteur dans le but d'améliorer son intégration [30, 34, 37, 101, 102]. L'influence des diamètres (électrique ou aérodynamique) sur la réponse du capteur a été étudiée pour des aérosols polydisperses [30], ou monodisperse couplé avec des effets thermophorétiques [36] avec une classification électrostatique. Dans ce travail, l'influence des diamètres sur la réponse du capteur sera analysée pour le capteur de suie résistif grâce à deux techniques de classification : électrostatique et aérodynamique. Le dispositif expérimental sera présenté dans le Chapitre 2 et les résultats dans le Chapitre 3.

Nous avons vu que Teike *et al.* [35] ont proposé un modèle numérique étudiant la construction des dendrites à la surface d'un capteur résistif. Ce modèle repose sur l'équation du mouvement d'une particule. La connaissance des forces est donc la clef de voûte de cette méthode. Comme les particules dont les diamètres sont les plus faibles se trouvent dans le régime intermédiaire, elles sont sensibles à la diffusion brownienne, un phénomène qui peut être modélisé par la force de Langevin [28, 35]. La force de Coulomb, la force diélectrophorétique, la force de traînée aérodynamique sont les principaux mécanismes affectant la trajectoire des nanoparticules de suie à l'échelle des électrodes inter-digitées du capteur résistif. C'est sur ces phénomènes physiques que l'approche numérique présentée dans le Chapitre 4 est basée. L'objectif de cette approche est de simuler la construction des dendrites et de comprendre les mécanismes en jeu en analysant leurs impacts respectifs.

Chapitre 2

Matériel et méthodes

L'approche expérimentale de cette étude a pour objectif de déterminer d'une part la sensibilité du capteur de suie résistif, et d'autre part l'impact de la taille des particules sur sa réponse. Pour cela, un banc d'essai a été modifié et amélioré pour y intégrer une fonction de classification et générer, à partir des suies produites par un mini-CAST, un aérosol mono-disperse. Deux techniques différentes ont été utilisées et sont présentées dans ce chapitre. Les avantages et les inconvénients de ces méthodes seront analysés ici. Enfin, le fonctionnement du banc et le protocole expérimental seront explicités.

2.1 Objectifs et stratégie de l'étude expérimentale	48
2.2 Présentation générale du moyen d'essai	48
2.3 Génération d'un aérosol de suie	50
2.4 Diluteur VKL Palas	53
2.5 Analyseurs	54
2.6 Pertes de particules	61
2.7 Le capteur de suie	62
2.8 Protocole expérimental	66
2.9 Conclusion sur les dispositifs expérimentaux	67

2.1 Objectifs et stratégie de l'étude expérimentale

De façon générale, l'objectif de ce travail de thèse est de mieux comprendre les phénomènes de captation, en vue de poursuivre le développement du capteur de suie résistif. Il s'agit d'un capteur robuste et bon marché en comparaison d'autres solutions de diagnostic embarqué (cf. Section 1.2.2). Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, plusieurs études ont montré que le capteur résistif est un capteur sensible à la concentration massique des suies dans le gaz d'échappement. En revanche, la mesure d'une concentration en nombre semble, en l'état actuel de la technologie, difficilement accessible. Nous souhaitons donc développer notre compréhension des mécanismes de captation dans ce but.

Nous avons vu que la pondération en nombre des particules de suie montrait un pic entre 10 nm et 100 nm (cf. Figure 1.17). Pour qu'un capteur résistif soit capable de mesurer une concentration en nombre, il est évident qu'il doit être sensible aux particules qui y contribuent le plus. Or, la littérature présente essentiellement des essais sous aérosols poly-disperses. Nous ne pouvons exclure que le capteur capte en réalité majoritairement les particules les plus massives, qui sont celles qui contribuent majoritairement à la concentration massique. Le dispositif expérimental qui a été dimensionné a donc pour objectif d'isoler les particules qui contribuent le plus à la concentration en nombre. Pour produire un aérosol mono-disperse¹, deux principes de classification ont été utilisés : une classification électrostatique et une classification aérodynamique.

Pour réaliser ce banc de test, nous avons repris, amélioré et complété le banc d'essais développé lors de la thèse de Didier Grondin [8], à l'école des Mines de Saint-Étienne. Dans ce chapitre, le banc initial sera présenté, puis nous nous intéresserons aux modifications que nous y avons apportées afin d'atteindre nos objectifs.

2.2 Présentation générale du moyen d'essai

2.2.1 Le banc à gaz de synthèse initial

L'objectif du banc d'essai initial était de pouvoir conduire des expérimentations sur un capteur de suie résistif. Les principaux paramètres pouvant être amenés à varier étaient alors :

- le point de fonctionnement d'un brûleur mini-CAST (*Combustion Aerosol STandard, Jing Ltd. Switzerland*) (cf. paragraphe 2.3) ;
- la tension de polarisation du capteur de suie (cf. paragraphe 1.2.2) ;
- la température (du gaz et du capteur) (cf. paragraphe 1.6.6).

Pour répondre à ces besoins, le banc était principalement constitué d'un générateur de particules mini-CAST (*Combustion Aerosol STandard, Jing Ltd., Zollikofen, Switzerland*), d'un four tubulaire permettant de pré-chauffer l'aérosol avant son arrivée sur le capteur et d'un analyseur Pegasor Particle Sensor (PPS-M, Pegasor,

1. Aérosol dont la distribution granulométrique, centrée sur un diamètre moyen et dont l'écart-type est petit devant celui de la granulométrie de la source de particules (moteur thermique, mini-CAST). Les caractéristiques de ces aérosols dépendent des instruments de mesure et seront explicitées pour chacun d'eux plus avant.

Tampere, Finlande) (cf. paragraphe 1.2.3), permettant de contrôler la stabilité du point de fonctionnement du mini-CAST. Un pré-chauffage des gaz est nécessaire pour éviter la condensation de l'eau mais aussi pour prévenir le dépôt thermophorétique sur les parois de la conduite menant au capteur. Ce pré-chauffage permet également de se rapprocher des conditions d'échappement moteur.

2.2.2 Adaptation du banc à la classification électrostatique des particules

L'objectif du banc expérimental est d'étudier l'impact de la taille des particules de suie sur la réponse du capteur résistif. Deux méthodes différentes ont été utilisées. Un *Differential Mobility Analyzer* (DMA 3081, TSI, Shoreview, MN, USA) a permis de réaliser une classification électrostatique, tandis qu'un *Aerodynamic Aerosol Classifier* (AAC, Cambustion, Cambridge, UK) a permis de classifier les suies par une méthode aérodynamique, comme son nom le suggère. Le principe de fonctionnement de ces appareils sera discuté plus bas (cf. Section 2.5). Dans un premier temps, nous donnerons un aperçu du banc d'essai avec tous ses composants et nous énoncerons brièvement leur rôle. Nous nous attarderons davantage sur leur principe de fonctionnement dans les paragraphes suivants.

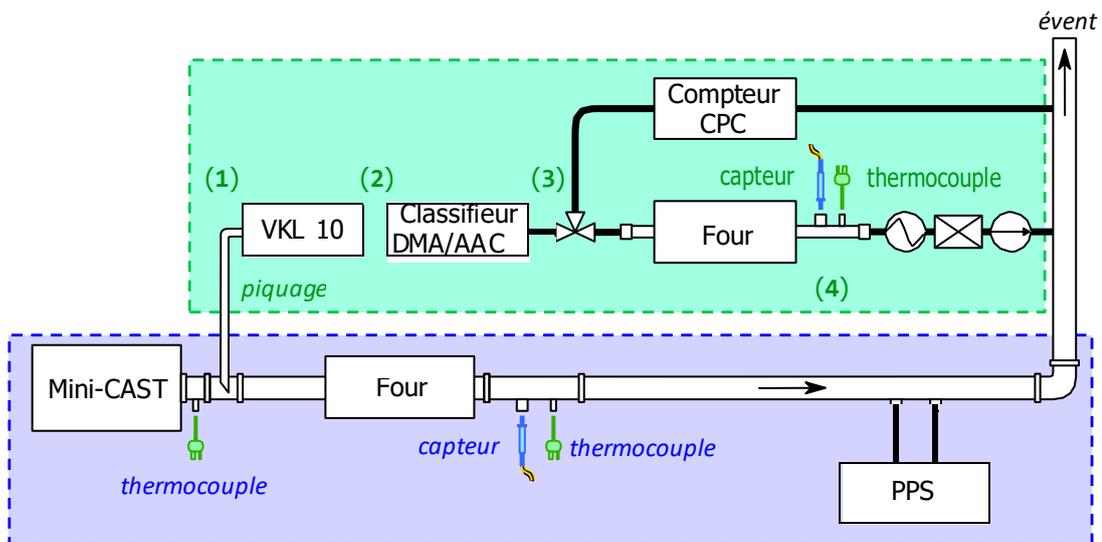


Figure 2.1 – Schéma général du banc d'essai initial (encadré bleu) utilisé pour l'étude menée par Grondin et al. [8] et sa modification pour la classification (encadré vert) mise en place dans la présente étude. Une fois l'aérosol généré par le mini-CAST, il est aspiré par le diluteur VKL 10 puis classifié par un AAC ou un DMA avant d'être transmis au capteur.

Sur la Figure 2.1, on peut voir les différentes étapes par lesquelles l'aérosol passe afin d'être classifié et transmis au capteur de suie. **(1)** Tout comme pour le banc initial, la génération des particules de suie est assurée par un brûleur CAST. A la sortie du CAST, la concentration en particules est de l'ordre de $C_1 = 2.5 \times 10^8 \text{ part./cm}^3$ et la température est $T_1 = 70^\circ\text{C}$. **(2)** L'aérosol est ensuite conduit par un tube d'inox de 10 mm de diamètre interne au diluteur VKL 10 (Palas GmbH, Karlsruhe, Germany). Il y est dilué 10 fois par de l'air comprimé filtré et séché,

afin de diminuer sa température en évitant de condenser l'humidité présente dans les gaz de combustion ($T_2 \approx 28^\circ\text{C}$ et $C_2 \approx 10^7 \text{ part./cm}^3$). Il est alors admissible par le DMA ($T_2 < 45^\circ\text{C}$) ou l'AAC (pas de température limite rapportée dans la documentation). **(3)** A la fin de cette étape de classification, l'aérosol est mono-disperse. La concentration diminue alors jusqu'à atteindre C_3 , qui est comprise entre 10^4 part./cm^3 et 10^5 part./cm^3 en fonction de la technique de classification et du diamètre des particules sélectionnées. **(4)** L'aérosol mono-disperse est chauffé par un four tubulaire à $T_4 = 180^\circ\text{C}$ avant d'être dirigé sur le capteur de suie.

Dans cette configuration, l'air est drainé à travers l'ensemble du dispositif par une pompe Gilian Gilair Plus au débit de 1.5l/min . Un filtre HEPA (*High Efficiency Particulate Air*) la précède pour prévenir sa détérioration. Un échangeur de chaleur est également placé avant la pompe, afin que la température d'entrée de la pompe ne dépasse pas 40°C .

Comme on peut le voir sur la Figure 2.1, le banc est prévu pour réaliser une granulométrie grâce à un *Scanning Mobility Particle Sizer* (SMPS, TSI, Shoreview, MN, USA). Le SMPS est constitué d'un classifieur DMA qui est couplé avec un compteur de particules *Condensation Particle Counter* (CPC 3022A, TSI, Shoreview, MN, USA) (cf. Section 2.5). Dans cette configuration, l'aérosol issu du classifieur DMA est entièrement dirigé vers le compteur CPC sans passer par la chambre du capteur. Il s'agit ici uniquement d'une configuration destinée à l'analyse de la granulométrie de l'aérosol généré par le mini-CAST. Remarquons ici que lors des tests réalisés avec l'AAC, la granulométrie a été réalisée en couplant l'AAC au CPC.

Enfin, un avantage de ce dispositif est qu'il permet d'isoler facilement la chambre du capteur du mini-CAST. Il est donc possible d'arrêter le flux de suie pour sortir le capteur de sa chambre en toute sécurité sans éteindre le mini-CAST, qui met environ une heure pour voir ses émissions se stabiliser en terme de distribution de taille. En outre, ceci permet de nettoyer le capteur avec de l'éthanol entre chaque séquence d'acquisition du signal. Ainsi, l'opérateur s'affranchi du nettoyage du capteur uniquement par sa régénération à 700°C . En effet, cette méthode est susceptible de donner lieu à des résidus de suie qui initieraient la formation de ponts, constituant une incertitude sur la mesure des temps de percolation. Pour des mesures à basse concentration (comme nous le verrons par la suite), le contrôle de l'état de surface initial des électrodes est important pour pouvoir comparer tous les signaux entre eux.

2.3 Génération d'un aérosol de suie

2.3.1 Principe de fonctionnement

Un brûleur de type mini-CAST a été utilisé dans cette étude pour modéliser un moteur à combustion de type Diesel. Dans ce système, les particules de suie sont générées grâce à une flamme de diffusion laminaire à co-courant. Il est essentiellement composé de deux tubes cylindriques coaxiaux. Le cylindre intérieur alimente la flamme en carburant (propane), et le cylindre extérieur l'alimente en comburant

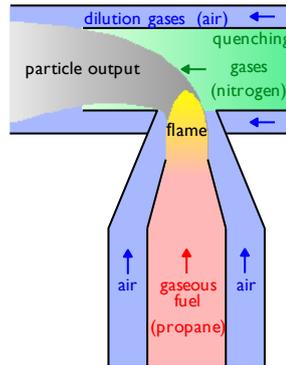
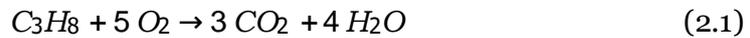


Figure 2.2 – Schéma de principe du mini CAST [103].

(air) (cf. Figure 2.2). La réaction de combustion en jeu est alors décrite par :



Une grandeur appelée richesse de la combustion peut être associée à cette réaction. Elle se calcule grâce à la relation :

$$R = \frac{Q_{\text{C}_3\text{H}_8}}{Q_{\text{air}}} \quad (2.2)$$

Du fait de l'utilisation d'air comprimé, le rapport stoechiométrique propane/air est de 1/23.8. La flamme est refroidie par de l'azote sous forme gazeuse (*quenching gases* sur la Figure 2.2), stoppant le processus de combustion et prévenant l'oxydation des particules de suie. En effet, l'oxydation est en compétition avec la formation des particules.

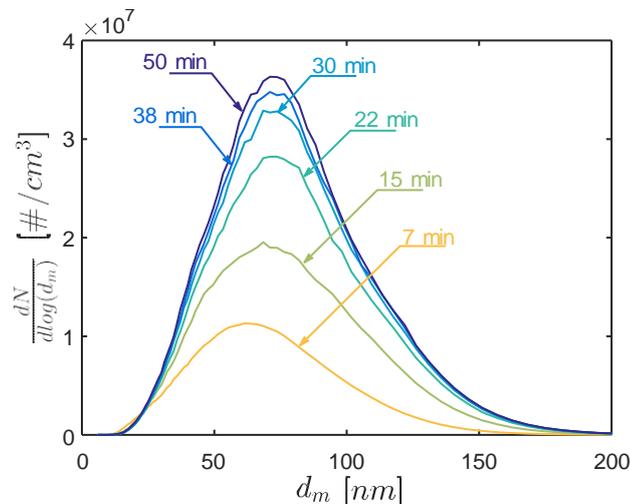


Figure 2.3 – Granulométries à différents pas de temps après allumage du mini-CAST.

L'aérosol constitué des particules ainsi générées est dilué par l'azote (*quenching gas*) afin d'éviter une croissance incontrôlée des particules par des processus d'agglomération. Les propriétés des suies, ainsi que leur concentration et leur distribution en taille peuvent être modifiées en changeant les débits des fluides en jeu : le propane, le comburant, l'air de dilution et l'azote. Ce sont ces débits qui définissent les différents points de fonctionnement.

Enfin, le brûleur CAST n'atteint pas un état stationnaire instantanément après son démarrage. Afin d'évaluer le temps nécessaire à l'atteinte d'un état d'équilibre, la granulométrie de l'aérosol généré par le mini-CAST a été mesurée à intervalle de temps régulier (cf. Figure 2.3). Nous pouvons conclure qu'une durée d'une heure est nécessaire à l'obtention d'un aérosol de concentration optimale.

2.3.2 Points de fonctionnement

De nombreuses études ont recours à un générateur de particules de type mini-CAST [104, 105, 106, 107]. Elles s'intéressent à des aspects différents des suies, comme leurs propriétés physiques ou leur nature chimique, sur des capteurs embarqués comme c'est le cas dans ce travail ou encore sur des analyseurs de laboratoire. Dans tous ces cas de figure, il est nécessaire de connaître précisément la nature des suies émises. Aussi, de nombreux réglages du mini-CAST sont décrits dans la littérature. Pour choisir les réglages adéquats, nous nous sommes reportés au travail d'analyse réalisé par Grondin *et al.* [8]. La granulométrie de différents points de fonctionnement est représentée sur la Figure 2.4. Chaque courbe correspond à un point de fonctionnement (PF), dont les caractéristiques sont restituées dans la Table 2.1.

Point de fonctionnement	Débit de propane [l/h]	Débit d'air [l/h]	Richesse [-]	Mode [nm]	Black carbon [mg/m ³]
PF1	3.6	93	0.97	93	143
PF1 B	3.1	80.1	0.97	93	81
PF4	3.6	90	1.00	70	70
PF5	3.6	88.2	1.02	52	22

Table 2.1 – Caractéristiques des points de fonctionnement du mini-CAST [30]

D'après ces données, les particules les plus fines (point PF5) sont générées pour une combustion légèrement riche. A l'inverse, les combustions dites pauvres donnent lieu à des distributions de particules plus grosses. Selon Moore *et al.* [106], qui ont réalisé des mesures sur la composition des particules issues du mini-CAST, les modes générant les particules les plus fines sont principalement dominés par la présence de carbone organique (OC), alors que les plus grosses sont essentiellement constituées de carbone élémentaire (EC). La nature chimique dépend donc de la taille des particules, ce qui rend la comparaison des réponses du capteur de suie pour différents points de fonctionnement difficile, et ne permet pas de tirer des conclusions relatives à la taille des nano-particules. En effet, pour chaque point de fonctionnement, la conductivité des suies est différente. C'est pour cette raison qu'il est nécessaire d'étudier les suies issues d'un même point de fonctionnement. Toutefois, il n'est pas garanti que les propriétés électriques soient homogènes quelque soit la taille des particules de suie.

2.3.3 Choix du point de fonctionnement

Dans le cadre de notre étude, la principale contrainte est la concentration en particules de l'aérosol. En effet, le dispositif expérimental impose une dilution et l'opération de classification contribue elle aussi à diminuer largement le nombre de particules de suie. De plus, rappelons que notre intérêt se porte sur les particules de taille $d_m < 100 \text{ nm}$. L'aérosol de suies généré avec le réglage PF4 respecte ces critères : le diamètre moyen est de 70 nm , la concentration en nombre est la plus élevée parmi les autres réglages étudiés et reportés sur la Figure 2.4.

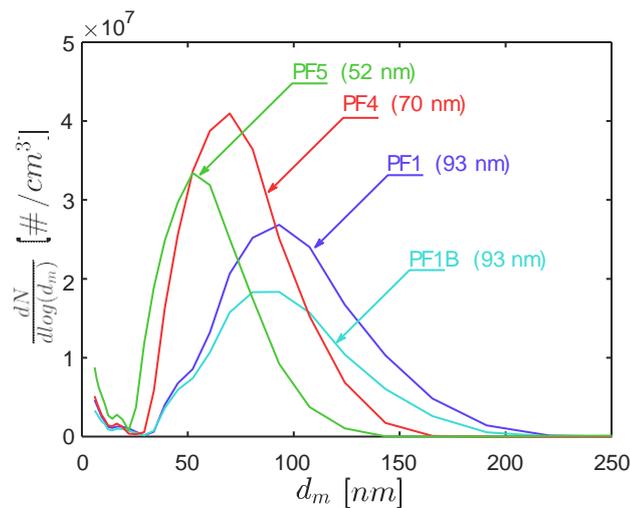


Figure 2.4 – Granulométries de différents points de fonctionnement du mini-CAST mesurées avec un EEPS (Engine Exhaust Particle Sizer, TSI) [30].

De plus, comme l'a montré Grondin *et al.*, la qualité du signal du capteur dépend de la conductivité des suies et de la teneur en *black carbon* (BC) [8]. Bien que la proportion de BC du PF4 soit deux fois inférieure à celle du PF1, elle reste acceptable compte tenu des réponses fournies par le capteur résistif. La majorité des essais avec classification ont donc été réalisés avec le point de fonctionnement PF4. Néanmoins, l'acquisition de quelques réponses avec le PF1 a également été réalisée en aérosol poly-disperse.

2.4 Diluteur VKL Palas

Les instruments permettant de classifier l'aérosol et d'en mesurer la granulométrie sont, avant tout, destinés à des mesures atmosphériques. Cet usage est différent de celui auquel nous les destinons. La principale différence réside dans la concentration en particules maximale admissible. De plus, la teneur en vapeur d'eau des gaz issus du mini-CAST, ainsi que leur température relativement élevée peuvent engendrer de la condensation au sein des appareils et fausser les mesures. De ce fait, il est nécessaire d'effectuer une opération de dilution avant que les gaz ne pénètrent dans les analyseurs afin d'en abaisser le niveau d'humidité et de réduire les risques de condensation. Pour cela, un diluteur VKL 10 (Palas GmbH, Karlsruhe, Allemagne)

a été utilisé (cf. Figure 2.1).

Les diluteurs VKL sont des systèmes basés sur le principe de l'éjecteur. L'aérosol est prélevé par la buse d'entrée grâce à la dépression engendrée par l'écoulement d'air comprimé (cf. Figure 2.5), à la sortie du mini-CAST dans notre cas. Puis, l'aérosol est mélangé à l'air comprimé dans la chambre de mélange. L'air comprimé est au préalable filtré et séché. En fonction du flux demandé en aval du diluteur (buse de sortie), l'excès est évacué à l'évent. Ceci permet de choisir le débit que l'on souhaite transmettre au reste du dispositif, c'est-à-dire au classifieur et/ou au capteur. Dans notre cas, ce débit est fixé à 1.5 l. min^{-1} par une pompe Gilair placée en aval du circuit. Notons que le taux de dilution de 10 a été vérifié par une comparaison de la concentration en nombre de particules en sortie du mini-CAST, puis après prélèvement par le diluteur. La mesure à la sortie du mini-CAST a été réalisée avec un Pegasor. Elle ne pouvait pas être réalisée par le CPC car la concentration de $2.5 \times 10^8 \text{ part./cm}^3$ est au-delà de sa gamme de mesure. En revanche, la mesure de concentration à la sortie du diluteur a été faite avec le Pegasor mais également avec le CPC, plus précis pour des concentrations plus faibles.

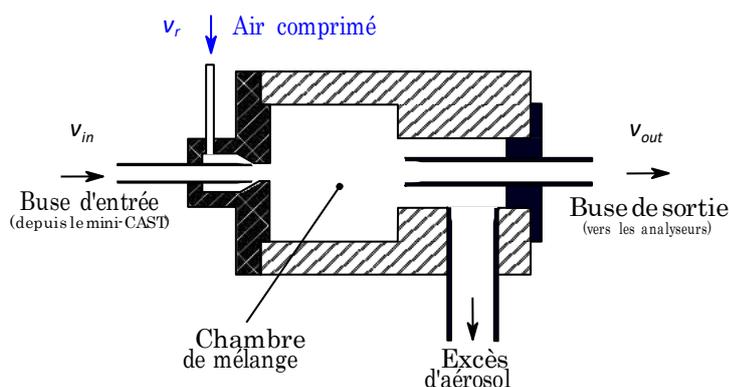


Figure 2.5 – Schéma du VKL, d'après [108].

2.5 Analyseurs

Comme nous l'avons déjà mentionné, des outils d'analyse dédiés à la mesure de particules ont été utilisés au cours de cette étude. Ces appareils sont le DMA, le CPC, l'AAC et le PPS. L'objectif de cette section est d'explicitier leur principe de fonctionnement, ainsi que leurs avantages et leurs limitations. De plus, nous avons vu que deux classifieurs différents (AAC et DMA) ont été utilisés afin de conduire une étude de sensibilité du capteur à la taille des nano-particules. Nous nous attarderons donc sur ces analyseurs. Les résultats obtenus seront discutés dans le Chapitre 3.

2.5.1 Differential Mobility Analyzer (DMA)

Le rôle du DMA est de classer les particules en fonction de leur mobilité électrique afin d'obtenir, à sa sortie, un aérosol mono-disperse à partir d'un aérosol poly-disperse en entrée. En plus de réaliser des mesures de granulométrie, le DMA a

été utilisé dans le but de classer l'aérosol avant qu'il ne soit envoyé vers la chambre du capteur de suie. Les premières études menées dans le but de concevoir cet analyseur furent certainement celles de Hewitt *et al.* dans les années 1950 [109]. Une version améliorée du classifieur électrostatique de Hewitt fût développée plus tard par Knutson et Whitby, qui explicitent son fonctionnement en 1975 [110].

Avant leur classification à proprement parler, les particules de l'aérosol traversent un neutraliseur rayons X (TSI, Shoreview, MN, USA). Il a pour objectif d'établir un équilibre connu du niveau de charges électriques dans l'aérosol, appelé équilibre de Boltzmann (*cf.* Section 1.5.4). La Figure 2.6 représente cet état d'équilibre et on peut remarquer que la proportion de particules chargées dépend de leur taille.

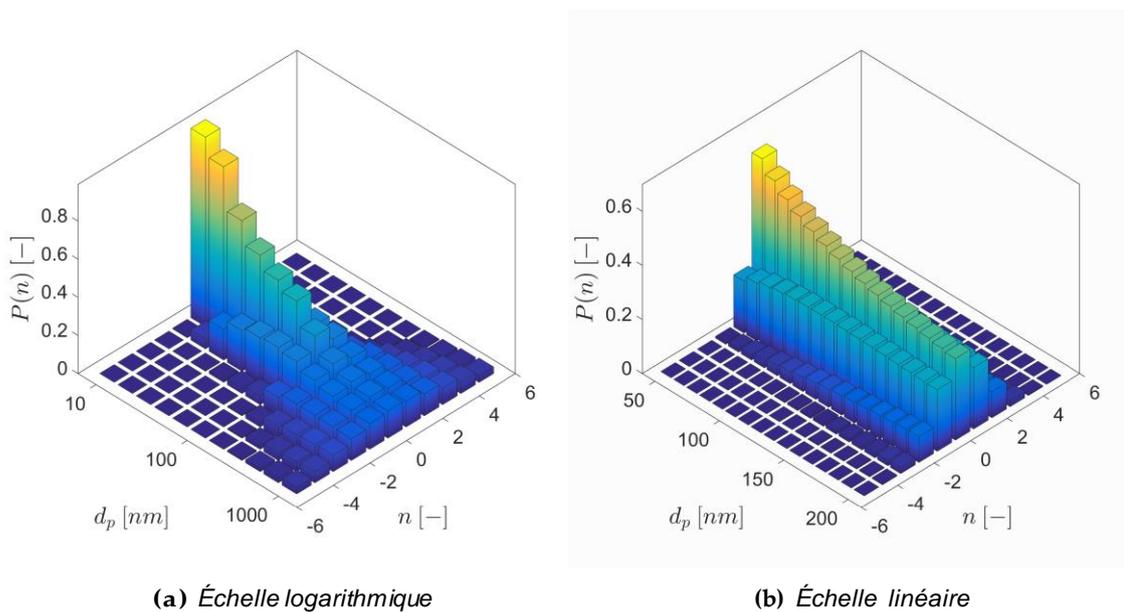


Figure 2.6 – Distribution de Boltzmann en fonction du diamètre de mobilité.

L'aérosol est ensuite amené jusqu'à la colonne du DMA. Elle consiste en deux cylindres concentriques entre lesquels un écoulement d'air entraîne les particules. Notons que cet écoulement est généré par un ajout d'air au débit de 15 l/min (appelé *sheath air*), ce qui a pour conséquence de créer une dilution interne de l'aérosol avec un taux de 10, le débit d'échantillon étant de 1.5 l/min . De plus, le cylindre intérieur est mis sous tension afin de créer un champ électrostatique entre les deux cylindres. Une fois entre les électrodes, les particules sont soumises à la force de Coulomb (notée F_E) et à la force de traînée (notée F_{drag}), exercée par le fluide, comme l'illustre la Figure 2.7. La force de traînée dépend directement de la taille et de la morphologie des particules. La force de Coulomb varie quant à elle en fonction du nombre de charges électriques portées par les particules de suie. Nous avons vu que le rapport de ces forces se traduit par la grandeur Z_p , appelée mobilité électrique (*cf.* Section 1.6.4). La distance L à laquelle les nano-particules impactent les parois de la colonne varie en fonction de leur mobilité électrique :

$$L = (w - y^*) \frac{Q}{Z_p(d^m, q)S} \quad (2.3)$$

Où S est la section droite de la conduite, Q le débit total entraînant les particules, et w et y^* des paramètres géométriques représentés sur la Figure 2.7.

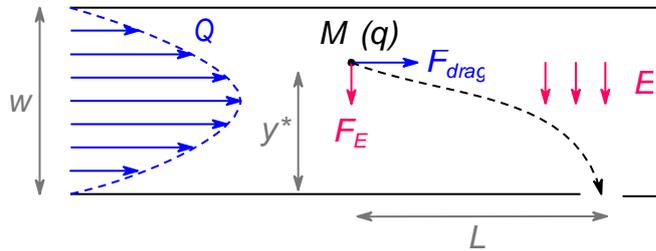


Figure 2.7 – Schéma simplifié d'une colonne DMA.

En contrôlant le potentiel électrique et le débit avec lequel les particules sont entraînées dans la colonne, le DMA sélectionne les particules en fonction de leur mobilité électrique, qui est liée à leur taille grâce à la connaissance de la distribution des charges électriques. Néanmoins, comme deux particules d'un même diamètre peuvent porter un nombre différent de charges élémentaires n_e , l'aérosol transmis peut contenir des particules de diamètres différents. Pour l'évaluer, nous avons représenté sur la Figure 2.8 la mobilité électrique pour plusieurs nombres de charge élémentaire n_e .

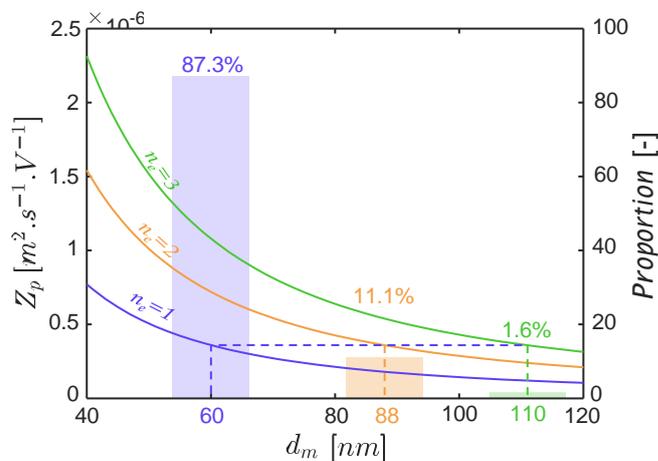


Figure 2.8 – Mobilité électrique en fonction du diamètre de mobilité pour plusieurs nombres de charges. Les proportions sont rapportées à l'aérosol transmis par le SMPS.

Ce phénomène a ici été illustré pour $d_m = 60 \text{ nm}$: une particule portant une charge e a la même mobilité qu'une particule de $d_m = 88 \text{ nm}$ qui en porte deux, ou qu'une particule de $d_m = 110 \text{ nm}$ qui en porte trois. D'après l'équilibre de Boltzmann, un pourcentage relativement faible (2.7%) des particules de 88 nm portent deux charges. La proportion de particules de 110 nm portant trois charges est encore plus faible (0.4%). Bien que la présence de particules plus grosses et plus chargées dans l'aérosol soit réelle, on peut raisonnablement supposer que, sur la base de l'équilibre de Boltzmann, la probabilité est faible devant la proportion de particules de 60 nm portant une charge e (21.3%). L'aérosol transmis est finalement

composé de 87.3% de particules de 60 nm portant une charge, de 11.1% de particules de 88 nm portant deux charges et de 1.6% de particules de 110 nm portant trois charges.

De plus, seules les particules chargées et de même signe peuvent être classifiées par cette technique. Ainsi, la pénétration² de l'aérosol est liée à la proportion de particules chargées qu'une classe de taille contient. Or, plus les particules sont fines, moins cette proportion est importante. A titre d'exemple, pour un diamètre de mobilité de 100 nm, 24% des particules portent une charge e . Pour des particules de 20 nm, cette proportion diminue jusqu'à 5.1% (cf. Figure 2.9).

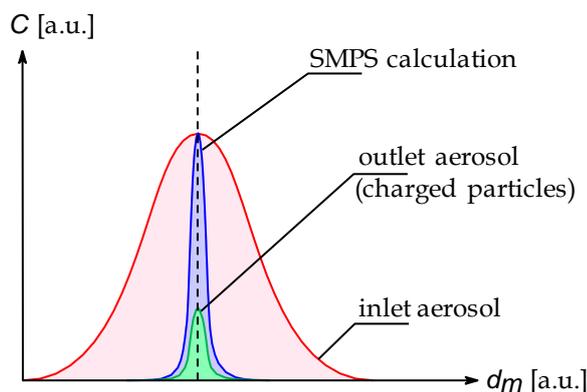


Figure 2.9 – Illustration du principe de la mesure effectuée par un SMPS (unités arbitraires). L'aire bleue représente la concentration calculée par le SMPS, sur la base de l'équation de Boltzmann. L'aire verte représente la proportion de particules chargées réellement mesurées en sortie du DMA.

Les travaux réalisés portent sur des particules dont le diamètre de mobilité est compris entre 60 nm et 100 nm. Dans la suite de cette synthèse, par soucis de simplification, nous évoquerons les classes de taille de 60 nm, 70 nm, 80 nm, etc. En réalité, la géométrie de la colonne du DMA ainsi que le débit de dilution interne à la colonne imposent une tolérance de classification de 2.1 nm à 5.3 nm, résumée dans la Table 2.2. La gamme de taille représente l'intervalle de classification. Finalement, la concentration de l'aérosol transmis est de l'ordre de $6.6 \times 10^3 \text{ part./cm}^3$ à $1.45 \times 10^4 \text{ part./cm}^3$ en moyenne et en fonction du diamètre de mobilité.

d_m [nm]	Gammes de taille [nm]	C_{moy} [10^3 part./cm^3]	Ecart relatif [-]
60	59.4 - 61.5	12.7	20.2 %
70	68.5 - 71	16.4	14.5 %
80	79.1 - 82	13.4	17.6 %
100	98.2 - 101.8	8.02	8.7 %
150	145.9 - 151.2	1.02	-

Table 2.2 – Gamme de diamètres de mobilité électrique. Les concentrations moyennes sont calculées sur l'ensemble des essais réalisés par classe de taille (mesures faites avec un CPC).

2. Rapport entre la concentration entrante et la concentration transmise par le DMA

2.5.2 Aerodynamic Aerosol Classifier (AAC)

L'*Aerodynamic Aerosol Classifier* remplit la même fonction que le DMA, mais avec une technologie différente. Là où le DMA utilise un champ électrique pour dévier les particules, l'AAC utilise leur propre force centrifuge. Pour cela, l'aérosol est entraîné, par un flux d'air, entre deux cylindres concentriques en rotation. Les particules sont alors soumises à la force de traînée engendrée par le flux d'air, mais aussi à la force centrifuge. Ainsi, un schéma analogue à celui du DMA peut être utilisé pour représenter le principe de fonctionnement de l'AAC (cf. Figure 2.10). Il en résulte que le DMA et l'AAC ne classifient pas les particules selon le même diamètre. En effet, c'est le diamètre aérodynamique d_a qui est considéré ici.

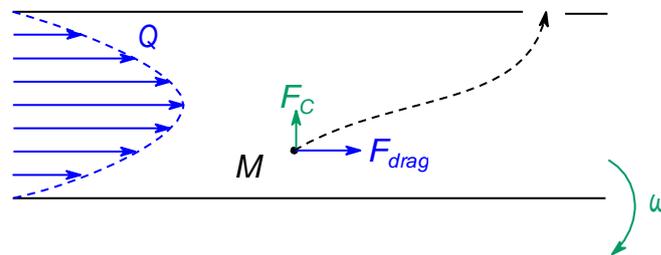


Figure 2.10 – Schéma simplifié d'un AAC.

La Figure 2.11 représente la granulométrie d'un aérosol classifié avec l'AAC. La concentration est mesurée par un CPC. On peut constater sur ce graphique que le point culminant en concentration est atteint pour $d_a = 60 \pm 5 \text{ nm}$. Les granulométries réalisées avec le SMPS révélèrent quant à elles un point culminant atteint pour $d_m = 70 \text{ nm}$. La relation entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique a été donnée dans le Chapitre 1 par la relation (1.19). D'après cette relation, on peut exprimer la masse volumique effective des agrégats en fonction de d_a et d_m :

$$\frac{\rho_{\text{eff}}}{\rho_0} = \frac{d_a^2 C_c(d_a)}{d_m^2 C_c(d_m)} \quad (2.4)$$

Faisons l'hypothèse que les maxima des granulométries mesurées par le DMA et par l'AAC caractérisent les mêmes particules. En injectant les diamètres $d_a = 60 \text{ nm}$ et $d_m = 70 \text{ nm}$ dans la relation (2.4), on obtient que $\frac{\rho_{\text{eff}}}{\rho_0} = 0.84$ ou $\rho_{\text{eff}} = 840 \text{ kg/m}^3$. Pour un point de fonctionnement mini-CAST de richesse équivalente, Yonet al. [55] ont mesuré $\rho_{\text{eff}} = 1160 \text{ kg/m}^3$ pour un diamètre de mobilité électrique de $d_m = 65 \text{ nm}$. Il faut donc même rester prudent concernant la valeur mesurée de la masse volumique effective. D'une part parce que la mesure du diamètre aérodynamique est relativement grossière et d'autre part parce que même si la richesse de la combustion est équivalente, le point de fonctionnement du mini-CAST diffère notamment sur le débit d'azote utilisé. Il est possible que ce dernier facteur affecte fortement la masse volumique effective. Cette mesure a pour intérêt de donner un ordre de grandeur à la masse volumique effective pour le modèle numérique. Nous

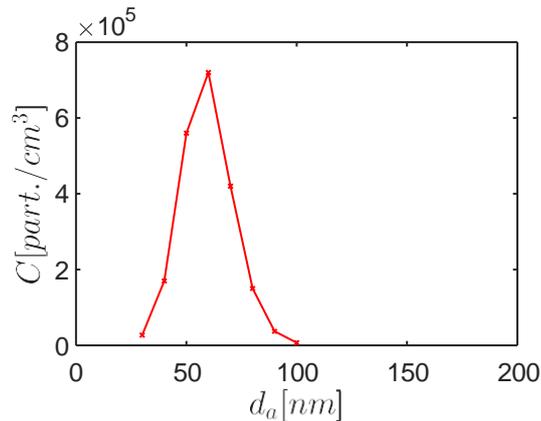


Figure 2.11 – Granulométrie du PF4 mesurée avec un AAC.

reviendrons sur ce point dans le Chapitre 4, lorsque leurs propriétés physiques seront définies pour l'approche numérique (cf. Section 4.5.1).

Enfin, définissons la résolution de l'AAC. Elle est définie comme le rapport entre le diamètre de consigne $d_{a,c}$ et la largeur à mi-hauteur de la fonction de transfert dans le domaine du diamètre Δ [111] (cf. Figure 2.12). Au cours de cette étude, nous avons choisi de maintenir Δ constant afin de conserver des conditions comparables entre les essais en terme de distribution granulométrique. Ceci se traduit, en pratique, par l'adaptation de la résolution pour chaque diamètre. Comme nous le verrons dans le Chapitre 3, nous nous sommes intéressés aux diamètres aérodynamiques $d_a = 50 \text{ nm}$ et $d_a = 70 \text{ nm}$ pour leur écart relativement significatif en terme de taille et leur proximité en terme de concentration. Les paramètres de l'AAC utilisés pour obtenir les réponses du capteur de suies sont restitués dans la Table 2.3. Enfin, on peut remarquer que les valeurs de Δ sont élevées lorsqu'elles sont comparées aux gammes de taille du DMA (cf. Table 2.2). Ceci a pour impact d'augmenter la concentration de l'aérosol mono-disperse.

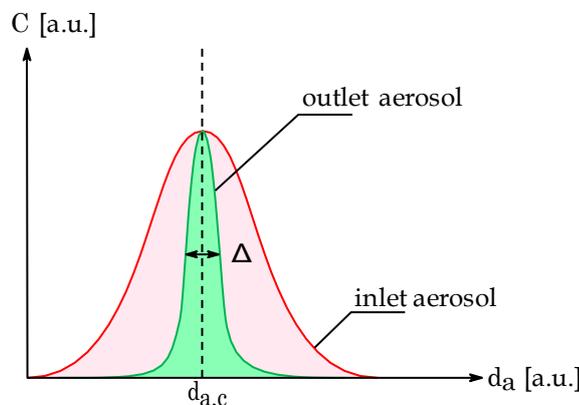


Figure 2.12 – Illustration du principe de la mesure effectuée par un AAC (unités arbitraires). L'aire verte représente la proportion de particules transmises.

d_a	R_s	Δ	C
[nm]	[-]	[nm]	[10^5 part./cm^3]
50	3.6	13.9	5.6
70	3.1	13.5	4.2

Table 2.3 – Paramètres de l'AAC pour les diamètres aérodynamiques étudiés.

2.5.3 Condensation Particle Counter (CPC)

Le CPC est un appareil qui a pour objectif de compter les particules contenues dans un aérosol et ce, jusqu'à des diamètres de particules de l'ordre du nanomètre, ce qu'est incapable de faire un compteur optique classique.

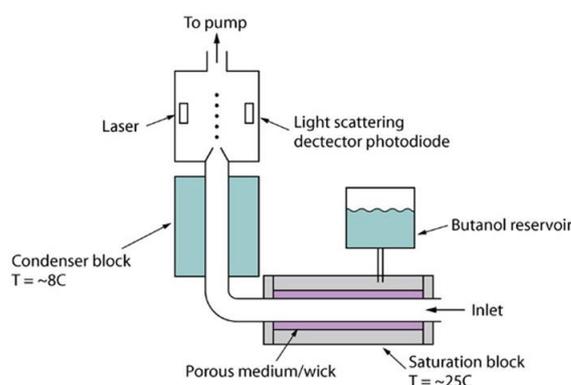


Figure 2.13 – Schéma d'un CPC [112].

Le phénomène permettant au CPC de détecter des diamètres aussi réduits est le grossissement des particules par condensation. L'aérosol traverse une zone supersaturée en butanol (cf. Figure 2.13). Un processus similaire à la nucléation a alors lieu, ce qui conduit à la formation d'une gouttelette d'environ $10 \mu\text{m}$ pour chacune des particules. Le taux de saturation du butanol doit être contrôlé avec précision car si ce n'est pas le cas, des gouttelettes peuvent se former dans l'air porteur. Le temps de réponse d'un CPC est de l'ordre d'une seconde.

Comme les CPC ne fournissent pas d'information sur le diamètre des particules, ils sont couplés avec un DMA afin d'obtenir une distribution de taille : le CPC mesure la concentration de l'aérosol pour chacune des classes de taille de particule présélectionnée par le DMA positionné en amont.

2.5.4 Pegasor (PPS)

Le Pegasor est un analyseur qui permet de mesurer la concentration en masse et en nombre d'un aérosol. Cet analyseur ne fournit pas d'informations relatives à la taille des particules. Contrairement au SMPS, le Pegasor jouit d'une plus grande tolérance en ce qui concerne la température d'entrée de l'aérosol. Il jouit également d'une plus grande dynamique. C'est pourquoi il était initialement positionné directement à la sortie du mini-CAST (cf. Figure 2.1).

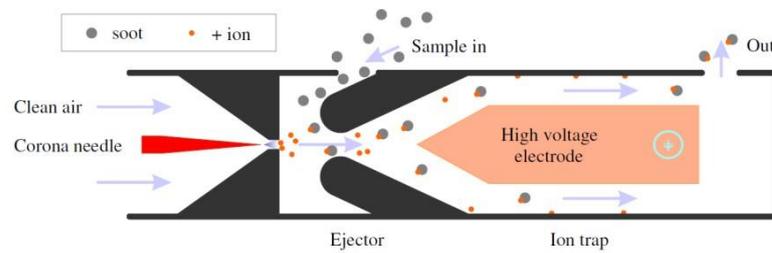


Figure 2.14 – Schéma de principe d'un instrument Pegasor [17].

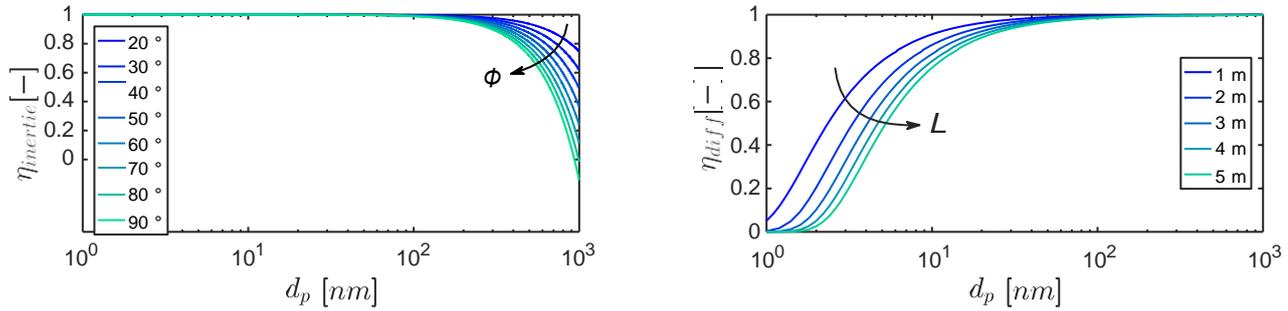
Il s'agit d'un dispositif basé sur la mesure d'une charge électrique. Cette technologie (cf. Figure 2.14) consiste à ioniser un écoulement d'air qui se mélangera aux particules. En se déposant à leur surface, les ions chargent donc les particules entrant dans l'analyseur. Les ions qui ne se sont pas déposés à la surface des particules ont une grande mobilité électrique et sont par conséquent captés sur le piège à ions. Il faut noter que c'est aussi le cas pour les particules les plus fines. Ainsi, les seules charges électriques présentes dans l'écoulement d'air sont celles portées par les particules [100]. La concentration en particules est finalement calculée grâce à la mesure de la charge des particules capables de quitter le piège à ions. La mesure de la charge est réalisée par un dispositif appelé *Faraday cup electrometer*. Cela consiste en l'assemblage d'un électromètre et d'un filtre dans une cage de Faraday. Les particules collectées dans le filtre génèrent un courant électrique qui est mesuré par l'électromètre.

2.6 Pertes de particules

Après la classification, les particules doivent être acheminées jusqu'au capteur. Le transfert de l'aérosol monodisperse est réalisé via des tubes de type « *bev-a-line* » en carbone, conçus pour être anti-statiques et éviter les pertes de particules aux parois par l'effet de l'électricité statique. Néanmoins, d'autres phénomènes peuvent conduire à des pertes de particules. La thermophorèse (cf. paragraphe 1.6.6) peut être responsable de pertes si des points froids sont présents sur les conduites que traversent l'aérosol. L'inertie des particules elles-mêmes peut conduire à les impacter contre les parois d'une conduite lors de la traversée d'un coude ou d'une réduction de diamètre. Il est donc primordial de réduire l'angle des coudes et la longueur des lignes pour une mesure fiable. Néanmoins, les pertes par inertie (et par action de la gravité terrestre) concernent principalement les particules les plus massives ($d_p > 500 \text{ nm}$ en fonction de l'écoulement), comme on peut le voir sur la Figure 2.15 (a). La pénétration des particules est donnée par la relation :

$$\eta_{inertie} = 1 - Stk \times \varphi \quad (2.5)$$

Où φ est l'angle du coude et Stk est le nombre de Stokes. Enfin, nous négligerons les effets turbulents dans ces considérations puisque, dans nos conditions, le nombre de Reynolds est seulement de $Re = 314$ pour un diamètre de tube de 6.35 mm , ce qui constitue la majeure partie des conduites dans ce banc d'essai, en dehors de la veine principale, du DMA et de la chambre du capteur.



(a) Pertes par inertie dans un coude pour plusieurs angles (b) Pertes par diffusion pour plusieurs longueurs de ligne

Figure 2.15 – Taux de pénétration des particules par taille.

Les particules plus fines ($d_p < 150 \text{ nm}$), qui font l'objet de notre étude, sont essentiellement sensibles aux pertes par diffusion (cf. paragraphe 1.6.7). Ces pertes peuvent être quantifiées par l'expression que Gormley *et al.* [113] ont établie en 1948.

$$\eta_{diff} = \begin{cases} 1 - 2.56\xi^{2/3} + 1.2\xi + 0.177\xi^{4/3} & \text{si } \xi < 0.02 \\ 0.819e^{-3.657\xi} + 0.097e^{-22.3\xi} + 0.032e^{-57\xi} & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.6)$$

Où $\xi = \frac{\pi DL}{Q}$ représente le coefficient de diffusion adimensionné. D est le coefficient de diffusion, L est la longueur de la conduite et Q est le débit qui la traverse. Dans notre cas, le débit est de $Q = 1.5 \text{ l/min}$. La Figure 2.15 (b) représente le calcul de ces pertes. On peut voir que ces pertes sont relativement faibles car la pénétration est de 99.1% pour $L = 1 \text{ m}$ et $d_p = 60 \text{ nm}$. La pénétration diminue jusqu'à 97% dans le cas d'une longueur de tube de 5 m. Dans notre cas, environ 80 cm de conduite ont été utilisés pour amener un aérosol contenant des particules de 60 nm à 150 nm jusqu'au capteur de particules. On peut donc s'attendre à des pertes relativement faibles. Il faut cependant être attentif aux nombreux phénomènes susceptibles de réduire la pénétration.

2.7 Le capteur de suie

Le capteur de suie en lui-même a été présenté dans la Section 1.3. Nous y avons expliqué son principe physique et ses dimensions. Dans cette section, nous allons présenter son intégration au banc d'essais d'un point de vue mécanique, mais aussi d'un point de vue électronique.

2.7.1 Chambre du capteur de suie

La chambre du capteur de suie est la pièce mécanique dans laquelle est placé le capteur et qui est traversée par l'aérosol mono-disperse, issu du classifieur électrostatique. Elle a été dimensionnée de façon à optimiser le taux de captation du capteur de suie. En effet, la faible concentration en particules a été identifiée comme étant la principale contrainte de ce dispositif expérimental.

Le capteur de suie est placé face au flux dans sa chambre. Cette orientation a été choisie pour éviter les pertes de particules par impaction au dos du capteur. Cette dernière a pour diamètre intérieur 9 mm. De plus, le débit maximal admis par le classifieur étant de $Q = 1.5 \text{ l/min}$, ce qui correspond à celui qui traverse la chambre du capteur. Par ailleurs, du fait des conditions de pression et de température après la dilution, la classification et le réchauffage de l'aérosol (P_{atm} , $T = 180 \text{ °C}$), le nombre de Reynolds vaut $Re = 110$. Le capteur de suie est donc positionné dans un écoulement laminaire.

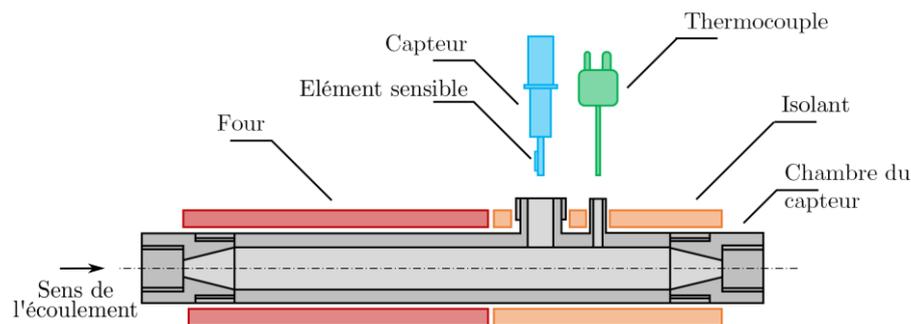


Figure 2.16 – Schéma du capteur et de sa chambre.

Comme on peut le voir sur la Figure 2.16, une portion de la chambre passe dans un four tubulaire. Un thermocouple est positionné à 4 cm en aval du capteur pour mesurer la température du gaz au centre de la veine. C'est grâce à cette mesure que le chauffage du four est régulé [8]. Comme nous l'avons vu, la température dans le gaz est fixée à 180 °C et une heure environ est nécessaire pour qu'elle se stabilise. Les mesures réalisées par le capteur ne doivent donc pas être réalisées durant cette période.

2.7.2 Régénération du capteur

Pour retirer les suies déposées à la surface du capteur, une résistance chauffante (ou *heater*) est située au dos du capteur. Le nettoyage de l'élément sensible est réalisé en chauffant le capteur pendant 3 minutes à 700 °C . La température T est liée à la résistance R du *heater* en platine par la relation :

$$T = T_0 + \frac{R - R_0}{R_0 a} \quad (2.7)$$

Avec R_0 la résistance du *heater* mesurée à la température T_0 et $a = 3.1 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ le coefficient de température du platine déposé par sérigraphie (qui diffère légèrement du coefficient du platine massif car il s'agit d'une encre). En pratique, la température du capteur est pilotée par un programme LabVIEW [8]. La résistance R_0 et la température T_0 doivent être calibrées pour chaque capteur par le biais de ce programme.

2.7.3 Acquisition du signal et polarisation du capteur

La polarisation du capteur est nécessaire pour observer la formation des ponts de suie, mais aussi pour détecter un signal [8]. Deux types de polarisations ont été considérées (cf. Figure 2.17). Une polarisation continue (bloc orangé, et une polarisation alternative (bloc mauve). La première a été mise en place dès la conception du banc lui-même. La seconde a été rajoutée pendant cette étude. Dans ce paragraphe, la méthode de mesure mise en place dans ces deux cas va être détaillée.

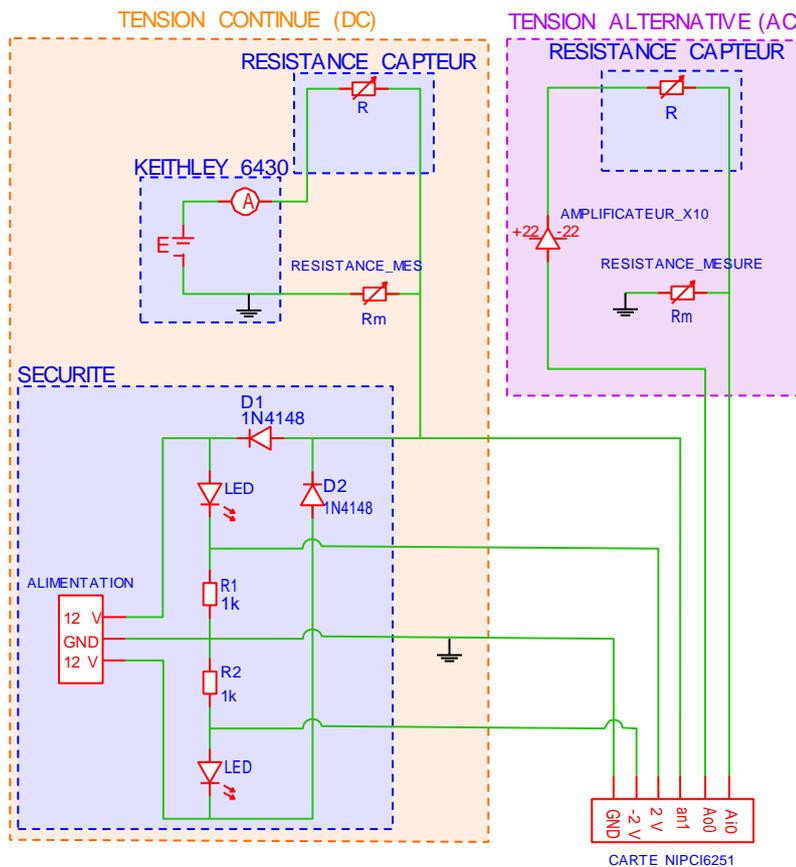


Figure 2.17 – Schéma électrique complet du circuit pour l'enregistrement du signal du capteur, d'après [8].

Tension continue Pour ce mode de polarisation, c'est un Keithley 6430 Sub-Femtoamp qui est en charge de la polarisation et de la mesure de la résistance du capteur (fréquence d'acquisition de 1 Hz). Le Keithley 6430 Sub-Femtoamp est un femto-Ampèremètre-source et permet de mesurer des résistances très importantes dans une grande gamme de mesure (du Ω au $T\Omega$). De plus, cet instrument est capable de générer une tension stable comprise entre -200 V et 200 V. C'est la tension de polarisation du capteur. Le Keithley 6430 Sub-Femtoamp est néanmoins limité en intensité : en-deçà de 20 V, le courant maximal est de 100 mA. Au-delà de 20 V, il n'est plus que de 10 mA. Cette limitation peut se montrer contraignante lors des mesures de fortes conductances ($G > 300 \mu S$) avec de fortes tensions de

polarisation [8]. Néanmoins, nous verrons plus tard que de telles conductances ont rarement été atteintes dans le cadre de cette étude.

En plus des mesures réalisées avec le femto-Ampèremètre-source qui sont lentes bien que précises, il est possible de mesurer la conductance du capteur à plus haute fréquence (5 kHz). Pour cela, il existe un second circuit de mesure de conductance construit autour d'une carte d'acquisition National Instrument PCI6251. Cette mesure est cependant moins précise que celle du Keithley 6430 Sub-Femtoamp.

Sur la Figure 2.17, on peut voir que le circuit électrique est constitué de plusieurs blocs. Le bloc « sécurité » est destiné à la protection de la carte d'acquisition grâce à l'écrêtage de la tension qu'elle voit (entre -12 V et +12 V). La « résistance mesure » contient cinq résistances de calibrage R_m de valeurs différentes : 100 Ω , 1 k Ω , 10 k Ω , 100 k Ω et 1 M Ω . Elles sont incluses dans le pont diviseur de tension qui permet de mesurer la conductance du capteur de suie. La carte d'acquisition enregistre une tension qui est convertie numériquement en conductance par la loi d'Ohm.

Keithley 6430	NIPCI 6251
$\frac{I}{E - G_m V}$	$\frac{G_m V}{E - V}$

Table 2.4 – Expressions de la conductance mesurée pour chacun des dispositifs d'acquisition. I est le courant, E la tension générée, V la tension mesurée et $G_m = \frac{1}{R_m}$ la conductance de calibrage.

Le bloc « résistance capteur » correspond à la mesure de la conductance entre les électrodes de platine (signal du capteur). Tout comme le contrôle de la température, l'acquisition du signal ainsi que la polarisation du capteur est interfacée par un programme LabVIEW. Cela permet à l'utilisateur de gérer et de visualiser l'ensemble des paramètres qui ont trait à la réponse du capteur de suie (tension de polarisation stationnaire ou sous forme de rampe, fréquence d'échantillonnage, température du capteur...).

Tension alternative Dans ce cas de figure, un signal alternatif carré d'amplitude de 2 V est généré par la carte d'acquisition National Instrument PCI6251. Ce signal est ensuite amplifié 10 fois. Dans cette situation, nous ne jouissons pas d'une double mesure comme précédemment puisque le signal est dirigé vers l'entrée Aio de la carte, comme on peut le voir sur la Figure 2.17.

On peut compter trois limitations à ce dispositif. Premièrement, la tension de polarisation ne peut excéder une demi-amplitude de 22 V dans ce contexte. Au vu des mesures réalisées dans des travaux antérieurs [8] cette valeur peut être considérée comme étant relativement faible, ce qui ne facilite pas la captation des particules sur le capteur. La deuxième limitation est que la fréquence ne peut bien entendu pas être augmentée indéfiniment. En pratique, la fréquence maximale tolérable par le système est de 50 kHz. Enfin, la troisième limitation est qu'il n'est pas possible si la fréquence est supérieure à la fréquence de coupure, de mesurer correctement la résistance du capteur. La fréquence de coupure du système est définie par la relation :

$$f_c = \frac{1}{2\pi RC_{el}} \quad (2.8)$$

Où R est la résistance du capteur, et C_{el} sa capacité. A vide, on mesure que $C_{el} = 1 \text{ pF}$ et $R = 10^8 \Omega$ donc $f_c = 1.6 \text{ kHz}$. Au début de la charge du capteur en suies, il n'est pas possible de mesurer sa résistance au-delà de la fréquence de coupure mais ce seuil évolue avec la résistance du capteur. Plus le capteur est chargé, plus sa résistance diminue et plus la fréquence de coupure augmente. Un signal peut donc être mesuré lorsque le capteur est suffisamment chargé (il faut que $G > 10 \mu S$).

2.8 Protocole expérimental

2.8.1 Préparation du banc

Un protocole expérimental a été mis en place pour l'acquisition du signal du capteur de suie (cf. Figure 2.18). Ce protocole peut être décomposé en deux parties. La préparation du banc et l'acquisition du signal. La durée de la préparation du banc est déterminée expérimentalement par la stabilisation de la granulométrie de l'aérosol (cf. Figure 2.3) et dure environ une heure. Lors de la phase de préparation du banc, l'aérosol est prélevé à la sortie du mini-CAST, dirigé vers le classifieur DMA et vers le compteur CPC. L'intégrité de ces derniers instruments est au préalable vérifiée en faisant un blanc, c'est-à-dire en mesurant la granulométrie d'un air filtré par un filtre HEPA, qui ne doit pas contenir de particules. La granulométrie de l'aérosol peut alors être mesurée.

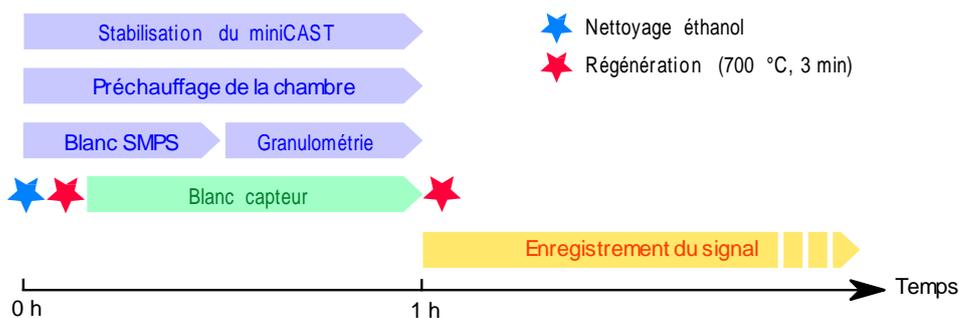


Figure 2.18 – Protocole expérimental.

En plus de contrôler la granulométrie, la stabilisation de la température de la chambre du capteur, mesurée par un thermocouple, doit aussi être vérifiée avant le début d'une acquisition. Bien que la température du four tubulaire soit régulée, approximativement une heure est nécessaire pour que le flux de gaz atteigne 180°C dans la chambre du capteur. Cette durée ne varie pas, que le capteur soit positionné sur la ligne principale à la sortie du mini-CAST ou dans sa chambre (cf. encadré bleu de la Figure 2.1). La phase de chauffe et de stabilisation nécessite donc au moins une heure. Lors des essais avec classification, cette durée peut être valorisée par la préparation du capteur.

2.8.2 Préparation du capteur

Capteur en sortie du mini-CAST Avant chaque mesure, le capteur est nettoyé afin de réaliser chacune des expériences dans les mêmes conditions. D'autre part, la présence de suies sur le capteur est susceptible d'amorcer une captation de particules par effets électrostatiques [35]. Le nettoyage du capteur dépend du dispositif expérimental. Dans la configuration initiale du banc (*cf.* Figure 2.1), le capteur ne peut être retiré sans arrêter le mini-CAST. Pour cette raison, le capteur est nettoyé par une régénération à 700 °C durant trois minutes (*cf.* Section 2.7.2).

Capteur en sortie du classifieur Dans la configuration de la classification, la chambre du capteur est isolée du reste du banc par une vanne (*cf.* Figure 2.1). Le capteur peut donc être aisément retiré pour un nettoyage avec un chiffon imbibé d'éthanol. Le capteur est ensuite régénéré à 700 °C. Cette opération est réalisée pendant la préparation du banc et le capteur est repositionné dans la veine, face au flux lorsque la chambre est encore en chauffe. Un blanc du capteur est alors réalisé pendant environ une heure. Lorsque la température et la granulométrie sont stabilisées, le capteur est régénéré une nouvelle fois à 700 °C, ce qui sert de repère en temps pour le début de l'expérience. Une fois que le banc et le capteur sont prêts, l'aérosol est dirigé vers la chambre du capteur et c'est à cet instant que débute l'acquisition du signal électrique. La durée des séquences d'acquisition est d'au moins 5 heures, du fait de la très faible concentration en nombre de particules. Cela permet d'observer la formation des premiers ponts.

2.9 Conclusion sur les dispositifs expérimentaux

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'ensemble des moyens expérimentaux mis en œuvre pour étudier l'impact de la taille des particules sur leur captation, grâce à la réponse d'un capteur résistif. Pour cela, le banc de test de l'école des Mines de Saint-Étienne a été modifié pour y intégrer un classifieur et une chambre adaptée à notre étude.

Deux analyseurs, fonctionnant sur des principes physiques différents, ont été utilisés pour classifier les particules en fonction de leur taille. Le DMA les classifie en fonction de leur mobilité électrique, ce qui a pour conséquence de réduire considérablement la concentration de l'aérosol mono-disperse, de l'ordre de $10^4 \text{ part.} / \text{cm}^3$. De plus, seules les particules portant une ou plusieurs charges élémentaires e sont transmises au capteur. L'AAC classifie, quant à lui, les particules en fonction de leur diamètre aérodynamique. Par conséquent, l'aérosol qui est transmis au capteur bénéficie intrinsèquement d'une concentration supérieure puisqu'il est composé de toutes les particules du diamètre considéré, qu'elles soient chargées ou non (*cf.* Figure 2.6). Dans ce dernier cas, le capteur jouit d'une concentration de $5.6 \times 10^5 \text{ part.} / \text{cm}^3$. Notons toutefois que cette différence est accentuée par les réglages du DMA. En effet, le débit destiné à entraîner les particules (noté Q_{sheath}) pourrait être diminué pour éviter une dilution interne trop importante dans la colonne du DMA, mais la précision de la classification s'en trouverait dégradée.

Enfin, le dispositif électrique permettant de polariser et d'enregistrer le signal du capteur a été décrit. Le banc de suie a été agrémenté de la possibilité de générer une tension de polarisation alternative. La demi-amplitude est de 22 V et la fréquence maximale du signal de 50 kHz . Toutefois l'aquisition n'est pas possible si la fréquence est supérieure à la fréquence de coupure du capteur. La tension alternative de polarisation a été ajoutée afin d'étudier les phénomènes d'électrophorèse et de diélectrophorèse, point sur lesquels nous reviendrons dans le Chapitre 3.

Chapitre 3

Réponse d'un capteur à un aérosol monodisperse

Dans ce chapitre seront présentés les résultats issus de l'approche expérimentale : la réponse du capteur résistif en fonction du diamètre des particules de suie, ce qui a permis de mieux comprendre les paramètres affectant le dépôt des particules sur le capteur. Afin de générer un aérosol monodisperse à partir des suies produites par le mini-CAST, deux techniques de classification ont été utilisées. Premièrement, un DMA a réalisé une classification électrostatique, générant un aérosol dont la charge électrique globale est homogène et non nulle. Deuxièmement, un AAC a permis de classifier les particules avec une méthode aérodynamique, conservant la distribution naturelle des charges électriques dans l'aérosol. Bien que les réponses du capteur à ces deux types d'aérosols soient différentes, l'analyse du temps de percolation a permis de conclure que les tendances étaient identiques quelle que soit la méthode.

3.1 Introduction et objectifs.....	70
3.2 Réponse sous aérosol polydisperse	70
3.3 Classification électrostatique	75
3.4 Oxydation des suies à la surface du capteur.....	87
3.5 Classification aérodynamique.....	90
3.6 Conclusion sur la classification des aérosols.....	95

3.1 Introduction et objectifs

Commençons par présenter les enjeux scientifiques et techniques de l'approche expérimentale. Après avoir présenté les moyens d'essais déployés pour cette étude (cf. Chapitre 2), les résultats de leur exploitation vont être exposés dans ce chapitre. Le premier objectif est d'améliorer la compréhension des mécanismes qui conduisent à la captation des particules de suie. Le second objectif est de réaliser une étude de sensibilité du capteur à la taille des particules de suie, dans le but de déterminer la faisabilité d'une mesure de la concentration en nombre avec un capteur résistif.



Figure 3.1 – Vue d'ensemble des enjeux et des moyens pour l'approche expérimentale.

Afin de remplir ces deux objectifs, le principal paramètre étudié fut la taille des particules. Les techniques de classification électrostatique et aérodynamique ont permis de maîtriser et de faire varier ce paramètre. La captation des particules de suie a été étudiée par le prisme de la réponse du capteur. Les signaux du capteur résistif sont en effet riches en informations. D'une part, la mesure du temps de percolation t_{perc} , qui détermine la vitesse de construction du premier pont reliant les électrodes entre elles, donne des informations sur le dépôt des particules. D'autre part, dans des conditions particulières, le signal du capteur peut contenir des informations sur la conductance des suies qui s'y sont déposées, voire sur leur vieillissement. Nous verrons que chacune des deux techniques de classification utilisées ici a donné accès à des informations différentes.

Enfin, en polarisation continue, l'impact de la valeur V_{pol} de la tension de polarisation a été étudié. En polarisation alternative, c'est sa fréquence qui a été considérée. Ceci a permis d'étudier la phénoménologie du dépôt et de discuter des hypothèses qui ont été faites pour la modélisation du problème dans le Chapitre 4.

3.2 Réponse sous aérosol polydisperse

3.2.1 Contexte et méthode

L'influence de la polarisation d'un capteur résistif a été étudiée au cours de plusieurs études [114, 8, 30]. Toutefois, seul le travail de Grondin *et al.* portait sur le même capteur (et donc avec la même géométrie d'électrodes) que celui étudié ici, et avec la même source de particules (mini-CAST). La gamme de tension variait alors de 10 à 80 V. Il a été mis en évidence que la tension avait un effet destructif sur les suies déposées sur les électrodes au-delà d'un certain seuil du fait de l'effet Joule.

Néanmoins, le rôle de la tension avant que la destruction ne survienne, a été peu étudié et c'est l'objet de cette première section.

Pour réaliser ces essais, la configuration initiale du banc (*cf.* encadré bleu sur la Figure 2.1) a été utilisée. Plusieurs cycles de vingt minutes ont été réalisés avec une tension de polarisation différente. Ces cycles sont séparés par une période de régénération de trois minutes et sont représentés sur la Figure 3.2.

3.2.2 Impact de la tension de polarisation

La Figure 3.2 permet d'observer l'impact de la tension de polarisation : plus la tension est haute, plus la conductance de l'élément sensible augmente rapidement. Pour mieux quantifier l'influence de V_{pol} , nous avons reporté sur la Figure 3.3 le temps $t_{1\mu S}$ mis par le signal pour atteindre la conductance de $1\ \mu S$. D'après ces résultats, la tension de polarisation diminue le temps pour atteindre $G = 1\ \mu S$, qui est une conclusion observée dans la littérature [30]. Néanmoins, la Figure 3.3 montre qu'un seuil semble atteint entre 10 et 15 V.

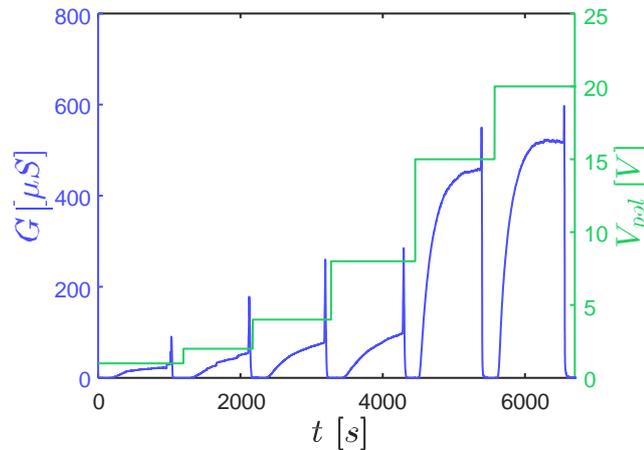


Figure 3.2 – Impact de la tension de polarisation sur le signal du capteur en sortie mini-CAST, face au flux. La fréquence d'acquisition est de 1 Hz.

En théorie, et comme nous le verrons dans le Chapitre 4, la captation des particules est fortement dépendante du champ électrique, c'est-à-dire de la tension de polarisation V_{pol} . En effet, les particules étant naturellement chargées, elles sont sensibles à la force de Coulomb. De plus, le rayon d'action de cette force est borné par la dimension des électrodes et nous verrons qu'il est du même ordre de grandeur que la largeur des électrodes (*cf.* Section 4.4). De ce fait, au-delà d'un certain seuil de tension, on peut supposer que ce rayon d'action maximal soit atteint et que la proportion de particules captées ne puisse plus augmenter. C'est ainsi que pourrait être expliqué l'allure asymptotique de $t_{1\mu S}$.

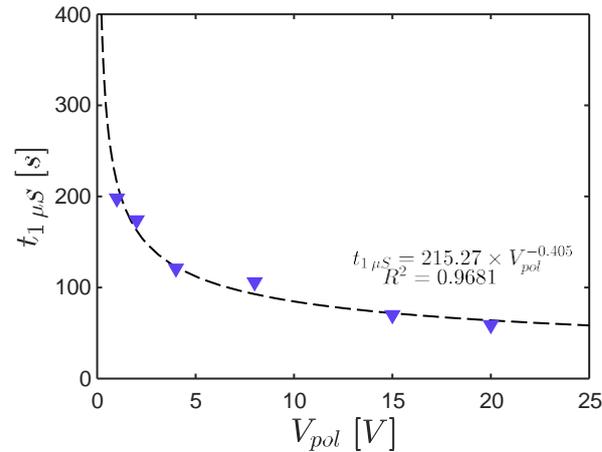


Figure 3.3 – Temps pour atteindre la conductance $1 \mu S$ en fonction de la tension de polarisation.

3.2.3 Impact de la fréquence de polarisation et de l'orientation du capteur dans le flux

Dans ces expériences, les fréquences ont été étudiées entre 0 Hz et 5 kHz et pour une tension de polarisation de 19 V . L'objectif d'étudier une tension alternative est de faire varier les forces électriques pour valider ou invalider le modèle de la diélectrophorèse. En effet, jusqu'à présent, l'électrophorèse est tenue comme étant l'une des principales responsables de la formation des ponts de suie sur le capteur résistif [35]. D'après le modèle développé dans le cadre de cette étude (cf. Chapitre 4), il serait possible de modifier le dépôt avec une tension alternative.

Le capteur était positionné selon trois orientations : face au flux, dos au flux et parallèle au flux de particules. La Figure 3.4 représente les réponses du capteur dans ces trois situations. Face au flux, la conductance mesurée par le capteur augmente sensiblement plus vite que pour les autres orientations. De plus, le temps de percolation est de 60 s . Lorsque le capteur est parallèle ou dos au flux, les réponses sont plus lentes : le temps de percolation est d'environ 100 s . De plus, le niveau de conductance atteint après 800 s d'exposition à l'aérosol n'est que de $150 \mu S$, contre $500 \mu S$ dans le cas d'une orientation face au flux. Face au flux, l'inertie des particules les plus massives favorise leur captation. Ce mécanisme de captation n'est pas aussi important lorsque le capteur est orienté dos au flux. La proportion de particules captées est donc moindre dans ce dernier cas. De plus, une étude aérodynamique (projet CICLAMEN) a montré que les particules de diamètre supérieur à $1 \mu m$ (cf. Figure 1.12) sont systématiquement entraînées par l'écoulement sans passer à proximité de l'élément sensible. Ce comportement est général mais accentué pour un écoulement à haut Reynolds.

En plus de l'orientation du capteur, la fréquence de polarisation a été étudiée. Les réponses sous tension alternative sont comparées avec les réponses sous tension continue (0 Hz sur la Figure 3.4). D'après ces résultats, la fréquence de polarisation ne semble pas avoir d'impact sur la réponse du capteur résistif et par extension,

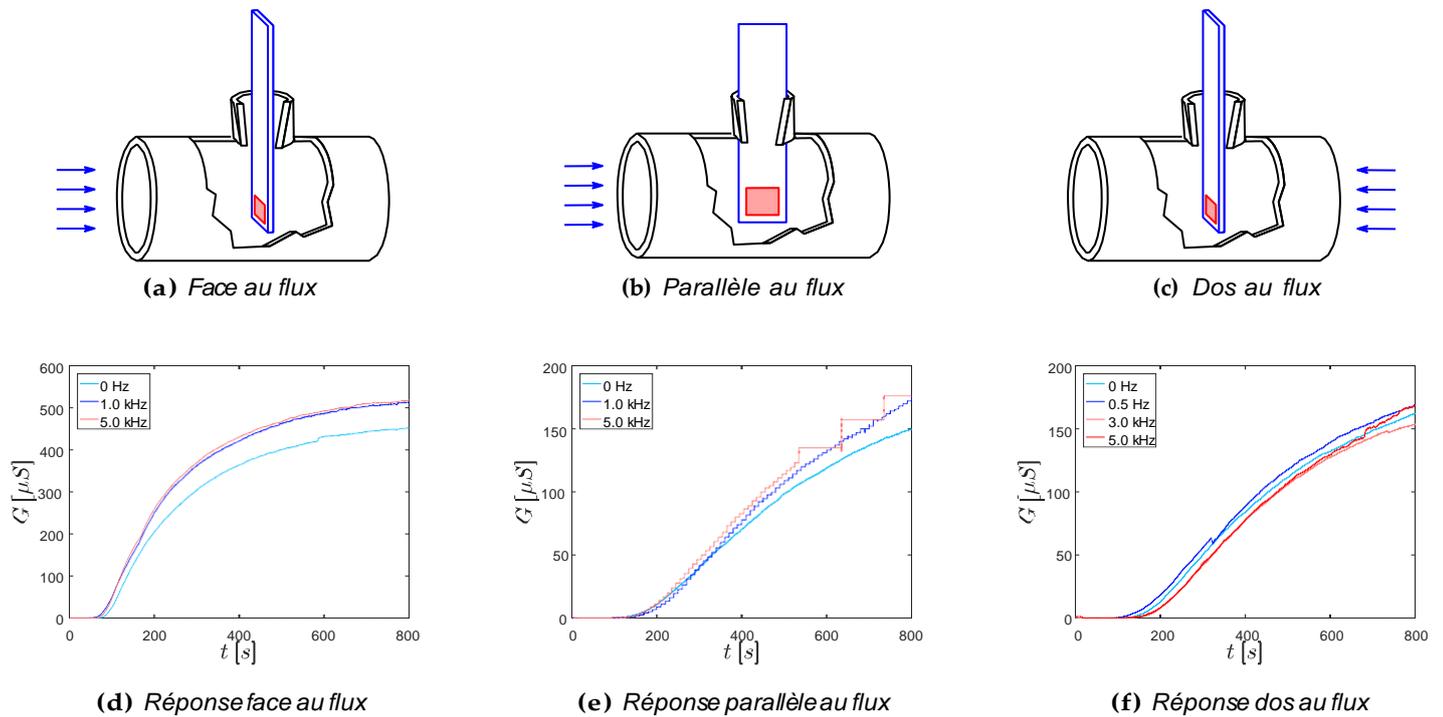


Figure 3.4 – Réponses pour différentes orientations du capteur et fréquences de polarisation.

sur la captation des particules de suie. Dans l'état actuel de nos connaissances, ce résultat ne peut pas être expliqué par un seul phénomène. Plusieurs interprétations ont donc été faites pour tenter d'apporter des éléments de réponse.

Interprétation 1 : fréquence trop faible Tout d'abord, il est possible que la gamme de fréquence étudiée ici soit trop faible (0 – 5 kHz). Dans ce cas de figure, une particule pourrait être attirée par la force de Coulomb et se déposer sur les électrodes avant même que la force de Coulomb ne soit devenue répulsive. Ce scénario est représenté sur la Figure 3.5 par la trajectoire 1 et s'oppose au cas où la fréquence est suffisamment élevée (trajectoire 2).

Interprétation 2 : tension trop faible Considérons l'équilibre entre les forces aérodynamiques (F_{drag}) et les forces électriques (F_C). Les simulations montrent que le champ électrique peut être divisé en deux zones. L'une est attractive pour les particules de signe opposé à la polarisation des électrodes et répulsive sinon. L'autre est inconditionnellement attractive (quelque soit le signe de la charge portée par une particule). Ces zones sont désignées par les lettres A et B (respectivement) sur la Figure 3.6. Les méthodes numériques seront décrites plus en détail dans le Chapitre 4.

- Si $F_{C,y} > F_{drag,y}$ (trajectoire 3 sur la Figure 3.5), les particules sont repoussées par la force de Coulomb. Si la tension est suffisamment élevée, la condition $F_{C,y} > F_{drag,y}$ sera vérifiée dans la zone A et la particule ne pourra pas pénétrer dans la zone B, inconditionnellement attractive.

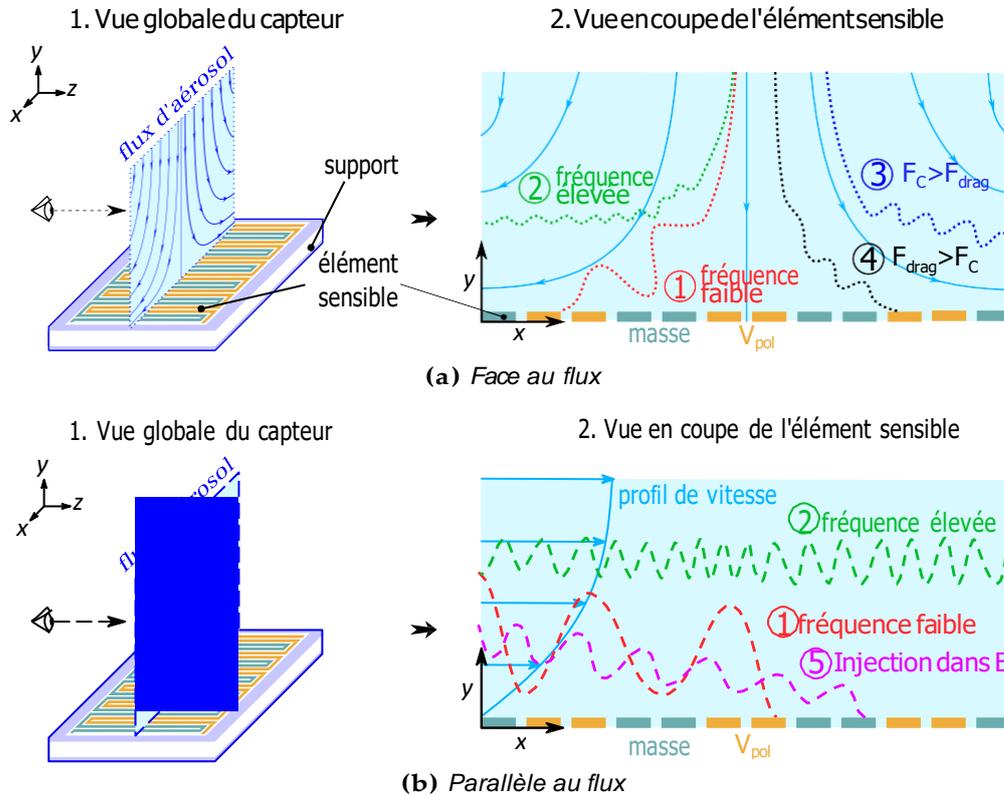


Figure 3.5 – Phénoménologie du dépôt sous polarisation alternative.

- Si $F_{C,y} < F_{drag,y}$ (trajectoire 4), les forces aérodynamiques¹ font franchir la frontière entre A et B, si bien que la particule est inconditionnellement captée, quelque soit la fréquence.

Enfin, dans le cas d'un écoulement tangentiel à l'élément sensible (cf. Figure 3.5 (b)), la composante normale de la vitesse du fluide est plus faible $F_{drag,x} > F_{drag,y}$. Donc en théorie, $F_{C,y} > F_{drag,y}$ est donc toujours observé. Néanmoins, la nature de l'écoulement permet aux particules d'être injectées directement dans la zone de captation inconditionnelle (zone B), empêchant définitivement la force de Coulomb de les repousser (trajectoire 5).

Interprétation 3 : prédominance de la diélectrophorèse Nous avons vu que la force de diélectrophorèse est susceptible d'agir sur les particules de suie au voisinage du capteur. Ce mécanisme a la particularité de ne pas dépendre du signe de la polarisation puisqu'il a la même direction que ∇E^2 , qui est inconditionnellement dirigé vers les électrodes (cf. Section 4.4). La prédominance de ce mécanisme pourrait donc expliquer l'invariance du signal pour une fréquence continue ou alternative. Or, la diélectrophorèse a une action d'autant plus intense que la particule a un rayon important car $F_{DEP} \propto r^3$. D'après les calculs de la Figure 4.22, il est probable qu'à longue portée, la captation ne soit assurée par la DEP que pour des particules dont le diamètre est supérieur à un diamètre en équivalent volumique de 250 nm.

1. Ou d'autres mécanismes tels que la thermophorèse ou la diffusion brownienne

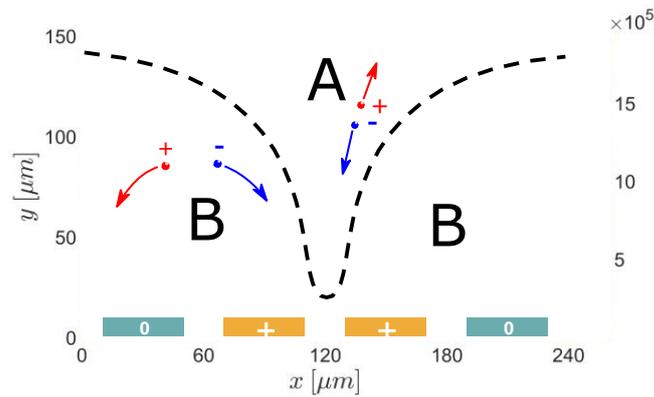


Figure 3.6 – Phénoménologie de la captation. Le champ électrique en V/m , ici pour $V_{pol} = 20 V$ et un espace inter-électrodes de $20 \mu m$. D'après les calculs présentés dans le Chapitre 4. Les électrodes « + » sont celles qui sont polarisées, les électrodes « 0 » sont celles qui sont reliées à la masse.

Cette dernière remarque mènerait à la conclusion que le capteur est principalement sensible à cette gamme de taille.

3.3 Classification électrostatique

La première méthode utilisée pour générer un aérosol monodisperse est une classification électrostatique, opérée par un *Differential Mobility Analyzer* (DMA). Le dispositif expérimental, ainsi que le principe physique du DMA sont retranscrits dans les paragraphes 2.2 et 2.5.1, respectivement.

3.3.1 Étude d'un cas particulier

Soumis à un aérosol classifié par le DMA, le capteur de suie résistif a un comportement très différent en comparaison de sa réponse en conditions classiques (cf. Figure 3.2), c'est-à-dire pour des concentrations de l'ordre de $10^7 - 10^8 \text{ part}/\text{cm}^3$. En effet, le capteur est par définition sensible à la concentration de l'aérosol et le dispositif de classification, couplé à la dilution, la réduit de façon importante. Les conséquences de cette baisse de concentration sont sévères et dégradent la qualité du signal. Quand la concentration est suffisamment élevée, le signal semble continu bien qu'il soit en réalité constitué de nombreux sauts de conductances [8]. En effet, à chaque fois qu'un pont de suie relie les électrodes entre elles, la conductance augmente de façon discrète (cf. Figure 3.7). Mais les ponts de suie ont une fréquence de construction si élevée qu'ils ne sont observables que grâce à une acquisition du signal à haute fréquence [30]. Les sauts de conductances peuvent également être observés juste après le temps de percolation (cf. Figure 3.7 b). A ce moment-là, peu de ponts sont formés et leur fréquence de complétion est encore suffisamment faible pour les distinguer. Notons que ce phénomène a été reporté dans la littérature par Fragkiadoulakis *et al.* [115].

Lorsque la concentration est suffisamment faible et avoisine un ordre de gran-

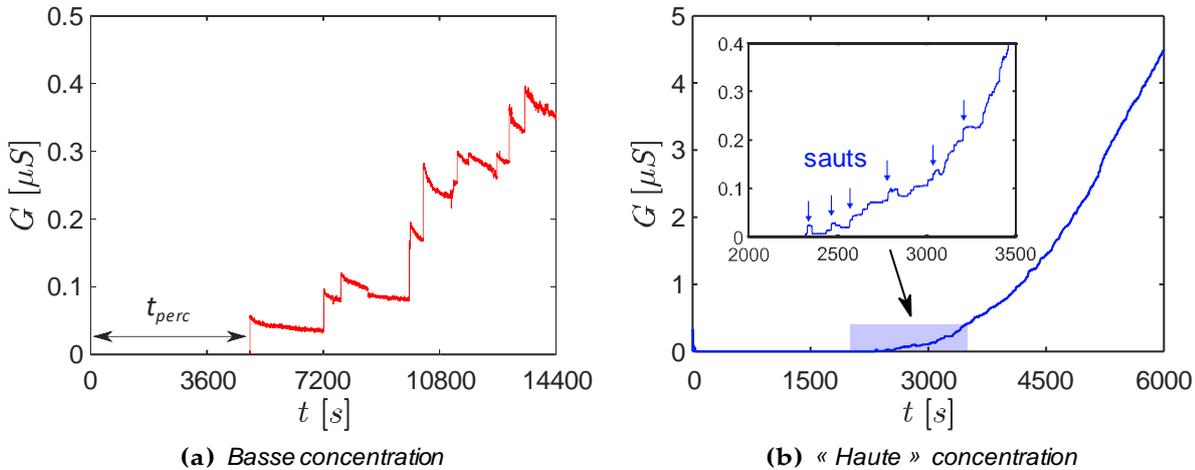


Figure 3.7 – Comparaison des réponses à un aérosol monodisperse de basse concentration ($d_m = 70 \text{ nm}$, $V_{pol} = 30 \text{ V}$, $C = 1.7 \times 10^4 \text{ part./cm}^3$) et « haute » concentration ($C = 5.6 \times 10^5 \text{ part./cm}^3$).

deur de 10^4 part./cm^3 , les événements que constituent les complétions de ponts sont rares et leur caractère aléatoire est exacerbé. C'est ce qui explique les rares sauts de conductance que l'on peut observer sur la Figure 3.7. Ceci fait de ces signaux des mesures aléatoires dont la reproductibilité est faible, comme nous le verrons plus en détail par la suite.

Rappelons que le temps de percolation, noté t_{perc} , correspond au temps écoulé entre le début de l'expérience et la formation du premier pont. De plus, le temps de percolation est beaucoup plus important que pour un fonctionnement en sortie CAST ($C \approx 10^7 - 10^8 \text{ part./cm}^3$), puisqu'il varie entre 28 minutes et 6 heures environ. Nous verrons plus bas que le diamètre de mobilité et la concentration de l'aérosol jouent tous deux un rôle dans la variation du temps de percolation. Nous nous sommes en particulier intéressé à cette grandeur car, dans un contexte où les expériences sont longues et les sauts aléatoires, il s'agit de la grandeur la plus fiable en comparaison d'autres grandeurs comme la pente du signal.

Enfin, on peut voir qu'après chaque saut, le signal décroît légèrement jusqu'à atteindre ce qui semble être une asymptote avec une constante de temps de l'ordre de dix minutes. Ce phénomène ne peut pas être observé pour les fortes concentrations car le temps caractéristique de construction des ponts est fortement inférieur à celui de la décroissance du signal. Des hypothèses et un modèle pour l'expliquer sont proposés dans la section 3.4.

3.3.2 Vue d'ensemble des réponses

Dans le but de réaliser une analyse de sensibilité sur le paramètre diamètre de mobilité, cinq diamètres différents ont été étudiés. Comme cela a été mentionné dans la Section 2.5.1, les diamètres de mobilité 60 nm , 70 nm , 80 nm , 100 nm et 150 nm ont été étudiés. Les diamètres 60 nm , 70 nm et 80 nm ont été choisis d'une part parce

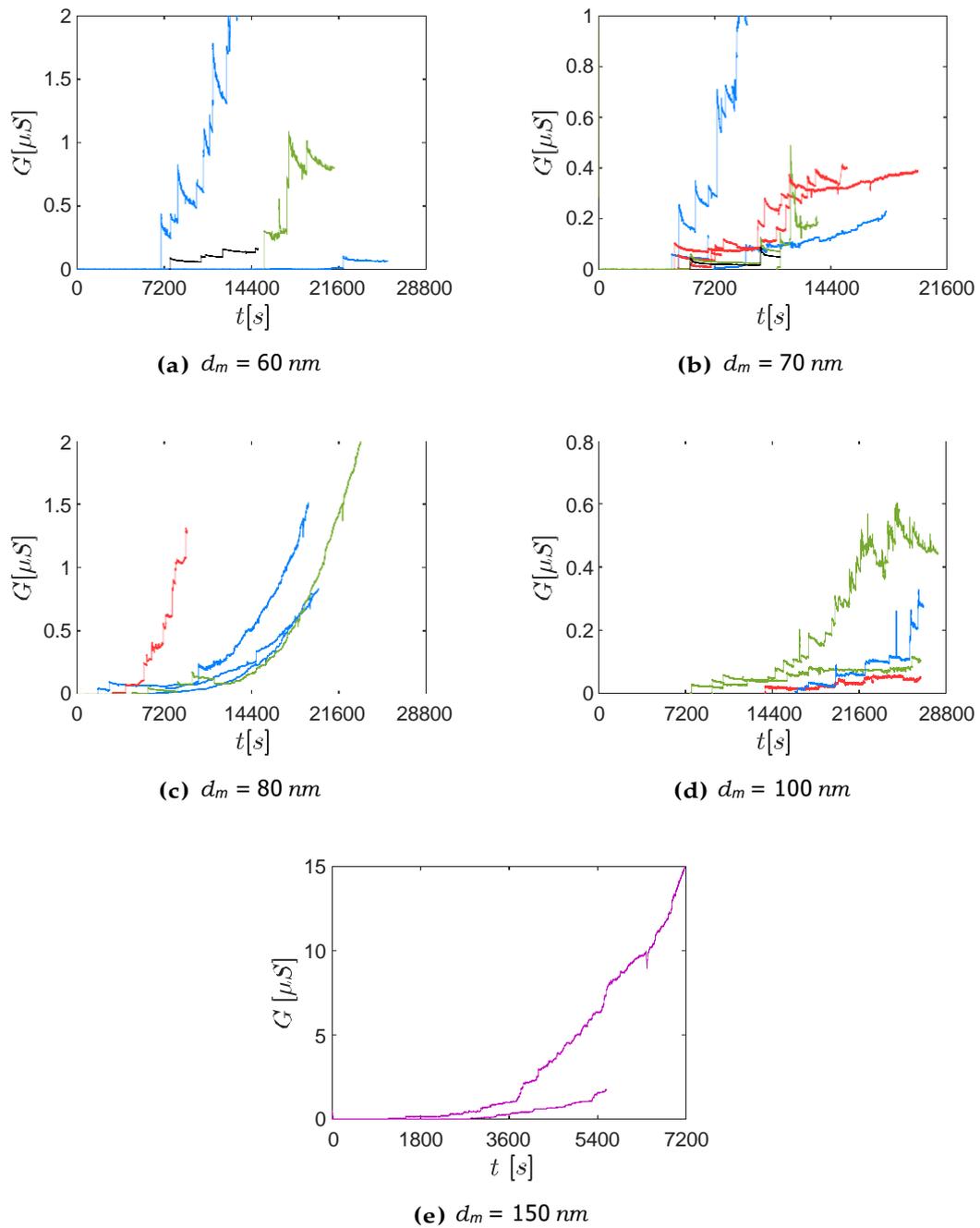


Figure 3.8 – Vue d'ensemble des signaux par diamètre de mobilité. Les couleurs des courbes représentent la tension de polarisation (violet : 19 V, rouge : 30 V, bleu : 50 V, vert : 70 V, noir : 100 V).

que leurs concentrations en nombre de particules sont proches les unes des autres, ce qui facilite la comparaison des résultats entre eux. D'autre part, ces diamètres correspondent aux concentrations maximales de la granulométrie de l'aérosol. Or, la concentration est un paramètre critique pour obtenir un signal exploitable du capteur.

La plupart des signaux enregistrés dans ce travail sont restitués dans la Figure 3.8. Ils y sont classés par diamètre de mobilité et colorés en fonction de la tension de polarisation utilisée pour chacun d'eux. A l'exception des signaux enregistrés pour $d_m = 80 \text{ nm}$ et $d_m = 150 \text{ nm}$, ils sont tous composés de sauts de conductances discrets, suivis d'une légère décroissance. Toutefois, il est difficile de tirer des conclusions à partir de ces mesures brutes, du fait du caractère aléatoire de la construction des ponts de suie. C'est la raison pour laquelle nous orienterons cette étude vers l'étude d'un paramètre : le temps de percolation.

3.3.3 Impact de la tension de polarisation

Valeur de la tension

Plusieurs tensions de polarisation, comprises entre 20 V et 100 V, ont été testées au cours de ces essais afin d'en évaluer l'impact sur les réponses du capteur. La figure 3.9 présente pour cela l'évolution du temps de percolation en fonction de la tension de polarisation. Comme on peut le voir, il semblerait que pour un aérosol monodisperse classifié électrostatiquement, il n'existe pas (dans la gamme de taille et de tension étudiée ici) de corrélation évidente entre le temps de percolation et la tension de polarisation. Aussi, nous considérerons dans la suite de cet exposé que la tension ne joue pas un rôle majeur. Ceci nous permettra de comparer entre elles des réponses à des aérosols dont le diamètre de mobilité des particules est différent, pour des tensions différentes.

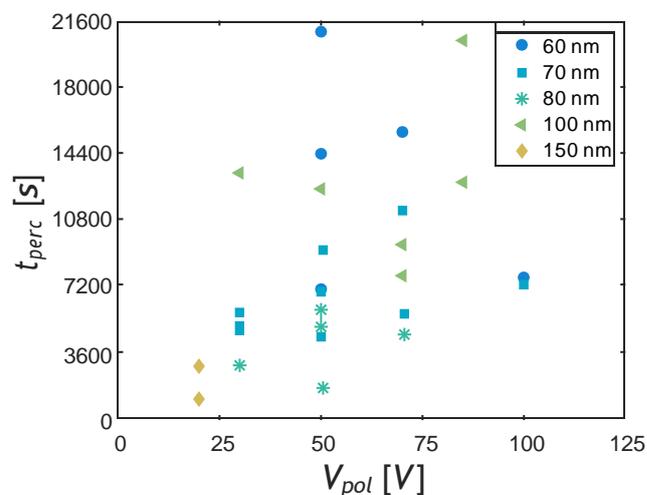


Figure 3.9 – Temps de percolation en fonction de la tension de polarisation.

Signe de la tension de polarisation

Des essais ont été réalisés avec une tension de polarisation négative (cf. Figure 3.10). Dans un aérosol polydisperse, les charges des particules suivant la distribution de Boltzmann, il n'est pas surprenant d'observer une réponse identique quelque soit le signe de la tension. De plus, les essais ont révélé que pour un aérosol monodisperse classifié par le DMA, dont la plupart des particules portent la même charge, le signal semble indépendant du signe de la polarisation. Ceci peut être dû au fait que la diélectrophorèse est le mécanisme de captation prédominant car elle ne dépend pas du signe de la tension de polarisation.

Cette observation peut aussi être due à la symétrie locale du champ électrique et à l'équilibre des forces agissant sur la particule. En effet, comme cela a été expliqué dans la Section 3.2.3, les particules chargées présentes dans la zone B sont captées par électrophorèse indépendamment du signe de leur charge. Toutefois, elles seront captées sur des électrodes différentes en fonction de leur signe. L'indépendance du signe de la polarisation signifierait donc que la tension n'est pas suffisamment forte pour repousser les particules lorsqu'elles sont dans la zone A. Elles pénètrent donc dans la zone B pour y être captées. L'augmentation de la tension tendrait à discriminer les particules de même signe que la polarisation.

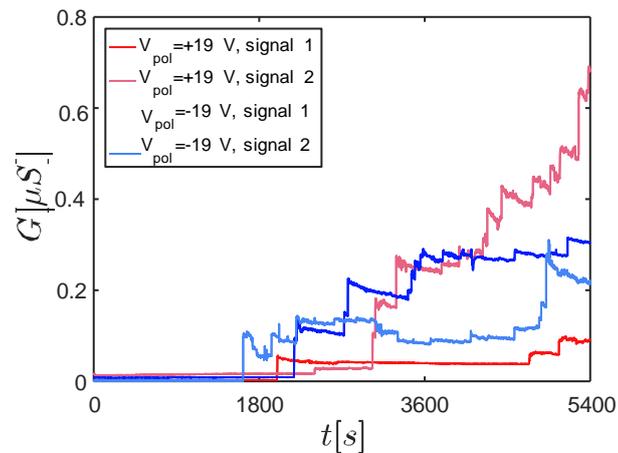
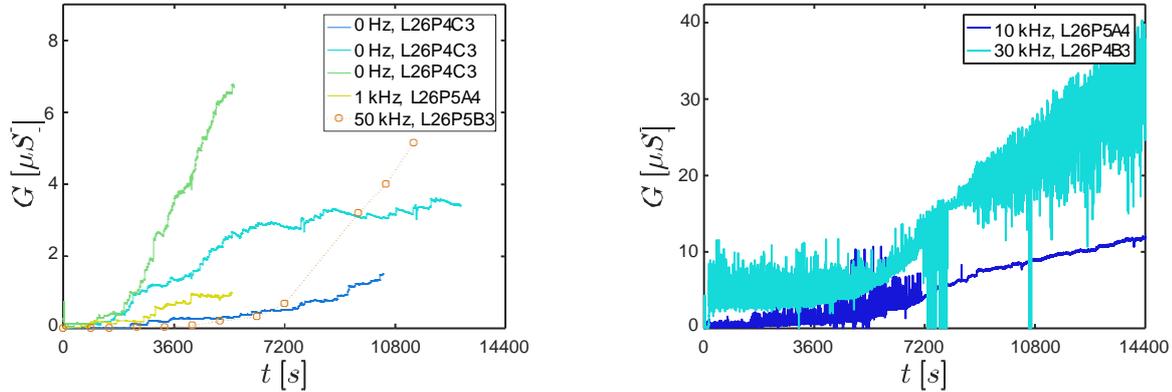


Figure 3.10 – Influence du signe de la tension, pour $d_m = 80$ nm, et $V_{pol} = +19$ V ou $V_{pol} = -19$ V.

Fréquence de la tension de polarisation

Pour ces essais, la fréquence était comprise entre 0 Hz et 50 kHz et pour des particules de 80 nm, chargées et de même signe. Trois essais en tension continue sont présentés sur la Figure 3.11 (a) pour appréhender la dispersion des réponses du capteur et la comparer aux essais en tension alternative. Ces trois essais ont été réalisés dans les mêmes conditions et avec le même capteur. La faible conductance de l'élément sensible induit une fréquence de coupure d'autant plus faible. De ce fait, la qualité du signal est nettement dégradée et est difficilement exploitable (cf. Figure

3.11 (b)) au-delà de 1 kHz. Sur la Figure 3.11 (a), les valeurs de la conductance pour 50 kHz ont été obtenues grâce à des acquisitions ponctuelles afin de perturber le moins possible le dépôt des suies.



(a) Polarisation continue et alternative

(b) 10 kHz et 30 kHz (fréquence de polarisation supérieure à la fréquence de coupure)

Figure 3.11 – Réponses pour des polarisations continues et alternatives. Les numéros de référence des capteurs figurent dans la légende.

Bien qu'il convienne de rester prudent dans l'exploitation de ces résultats, la tension alternative ne semble pas affecter les réponses du capteur dans la marge de la reproductibilité des mesures. En nous reportant à nouveau aux interprétations de la Section 3.2.3, l'indépendance par rapport au paramètre fréquence pourrait être interprétée par :

- Une fréquence trop faible, bien qu'en théorie elle soit suffisamment élevée compte tenu des vitesses en jeu (cf. Section 4.6.1).
- Une tension de polarisation trop faible. Il est en effet probable que les 19 V utilisés ici ne permettent pas de repousser convenablement les particules hors de la zone B. C'est également la conclusion de l'étude du signe de la tension.
- La prédominance d'effets diélectrophorétiques. D'après les estimations issues des simulations du Chapitre 4, les particules utilisées ici auraient toutefois des dimensions qui se prêteraient mal à un tel phénomène.

3.3.4 Impact du diamètre de mobilité

Intéressons nous désormais à l'influence du diamètre de mobilité. Traçons cette fois le temps de percolation en fonction du diamètre de mobilité des particules (cf. Figure 3.12). On distingue trois comportements différents, sur lesquels nous allons nous attarder à tour de rôle. Nous allons nous pencher sur les effets du diamètre de mobilité et de la concentration car ils sont intrinsèquement couplés dans ce dispositif expérimental. En premier lieu, mentionnons le fait que, a priori, une augmentation de la concentration a tendance à diminuer le temps de percolation [34].

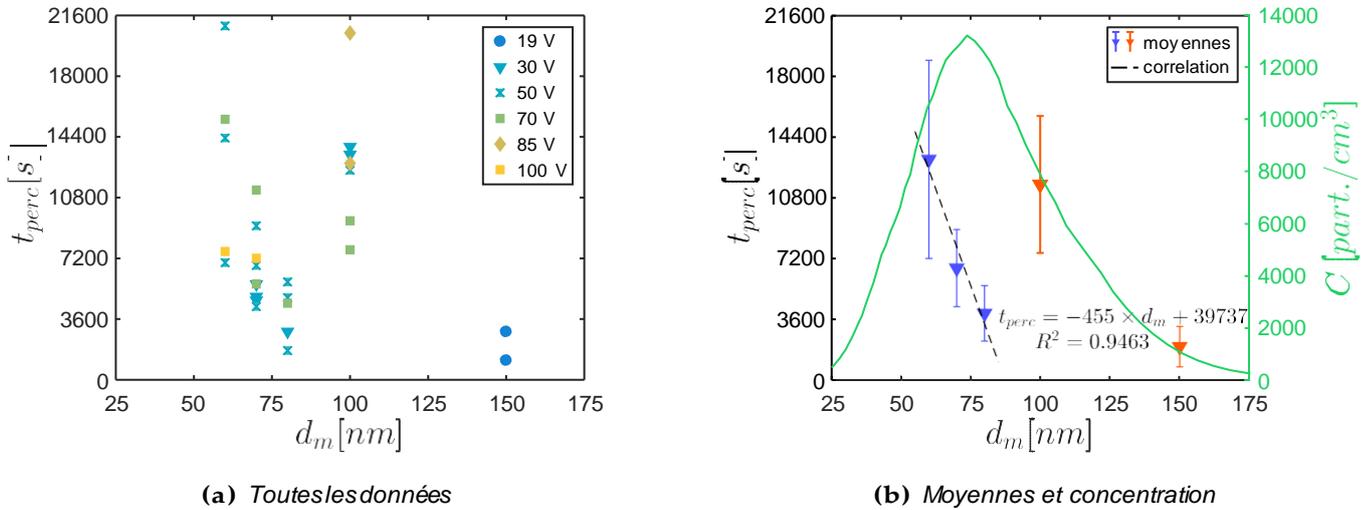


Figure 3.12 – Temps de percolation en fonction du diamètre de mobilité. La corrélation pour $d_p = \{60; 70; 80\}$ nm a été calculée avec les moyennes du temps de percolation pour chaque diamètre de mobilité et est uniquement destinée à illustrer le lien entre les paramètres. La concentration représentée correspond à celle de l’aérosol transmis au capteur de suie.

Sensibilité au diamètre de mobilité

Tout d’abord, intéressons nous aux essais réalisés pour $d_m = \{60; 70; 80\}$ nm. On peut voir pour ces données que, malgré l’importante dispersion des temps de percolation, une tendance peut être dégagée. Le temps de percolation diminue lorsque le diamètre de mobilité des particules augmente. En d’autres termes, plus les particules sont de taille importante, plus les ponts de particules se forment rapidement. Une explication simple, voire simpliste, de ce phénomène, peut tenir dans le fait que la contribution géométrique des particules aux ponts explique entièrement ces résultats. On peut ici faire l’analogie entre un aqueduc et les ponts de suie. Si un aqueduc permet à l’eau de passer d’une berge à l’autre, les ponts de suie ferment le circuit électrique et laissent le courant électrique passer d’une électrode à l’autre. De même qu’un pont de suie est construit d’autant plus rapidement que la taille des particules augmente, la construction d’un aqueduc est d’autant plus rapide qu’il est construit avec de grandes briques.

Ces premiers résultats permettent de distinguer l’influence de la taille car les concentrations pour chacun des diamètres sont relativement proches. Autrement dit, l’effet du diamètre de mobilité prédomine sur les effets liés à la concentration de l’aérosol. On peut donc raisonnablement conclure que le capteur résistif est sensible à la taille des particules, dans la gamme étudiée ici.

Sensibilité à la concentration

Par définition, le capteur résistif est sensible à la concentration car c’est pour évaluer cette mesurande qu’il a été conçu. Or, lorsque le diamètre de mobilité est

modifié, la concentration l'est intrinsèquement, de part le caractère gaussien de la granulométrie. Ceci a pour conséquence de masquer la tendance dégagée dans le paragraphe précédent, et de complexifier l'interprétation des résultats. C'est notamment le cas pour les essais avec $d_m = 100 \text{ nm}$. La concentration en nombre de l'aérosol transmis $C(100 \text{ nm})$ est presque réduite de moitié en comparaison de $C(70 \text{ nm})$ (cf. Section 2.5.1). Ceci a pour conséquence d'augmenter le temps de percolation par rapport à ce qui aurait été observé si tous les points avaient été mesurés à concentration égale. En comparaison avec les points $d_m = \{60; 70; 80\} \text{ nm}$, les effets liés à la concentration sont prédominants sur les effets induits par le diamètre de mobilité.

Cas particulier du diamètre $d_m = 150 \text{ nm}$

Pour des particules de $d_m = 150 \text{ nm}$ un temps de percolation de 1993 s a été mesuré. Malgré une concentration plus de dix fois inférieure à la concentration maximale de la granulométrie (cf. Section 2.5.1), le temps de percolation est inférieur à celui des points $d_m = 100 \text{ nm}$. Dans ce cas particulier, la taille des particules aurait donc un effet prédominant sur la concentration, ce qui serait dû au fait que le capteur étudié serait principalement sensible aux particules de plus grand diamètre de mobilité électrique.

Il faut néanmoins pondérer ces derniers résultats en remarquant que seules deux mesures ont été réalisées pour le diamètre de mobilité $d_m = 150 \text{ nm}$. Ce point ne possède donc pas le même poids statistique que les temps de percolation mesurés pour 60 nm , 70 nm , 80 nm et 100 nm . Pour représenter le rôle du diamètre de mobilité et de la concentration, une méthode pour découpler ces paramètres du temps de percolation a été mise en place.

3.3.5 Découplage diamètre-concentration

D'après les résultats de la Figure 3.12, l'impact du diamètre de mobilité et de la concentration sur le temps de percolation ne sont pas séparés. Dans ce paragraphe nous présenterons une tentative de calcul permettant de modéliser les influences de ces deux variables. L'objectif est de corriger l'influence de la concentration pour expliquer le point $d_m = 100 \text{ nm}$. Dans ces calculs, nous ne tiendrons pas compte du point $d_m = 150 \text{ nm}$ car deux essais seulement ont été réalisés avec ce diamètre de mobilité, mais nous le comparerons néanmoins au modèle. Commençons par faire les hypothèses sur lesquelles repose cette méthode.

(i) L'impact de la tension de polarisation est négligé devant ceux des deux autres paramètres (cf. Figure 3.8).

(ii) D'après Brunel *et al.* [34], le temps de réponse du capteur est asymptotique. Posons alors :

$$t_{\text{perc}} \propto \frac{1}{C} \quad (3.1)$$

Nous supposons qu'il ne dépend pas du diamètre de mobilité d_m . Ceci signifie que nous considérons que l'impact de la concentration sur le temps de réponse suit la

même loi pour un aérosol poly-disperse (conditions expérimentales considérées par Brunel *et al.*) que pour un aérosol monodisperse de concentration faible.

(iii) Quels que soient d_m et C , $t_{perc} > 0$. En effet, un pont de particules ne peut pas être construit instantanément. Posons, de façon arbitraire :

$$t_{perc} \propto \frac{1}{d_m^\Psi}, \Psi \in \mathbb{R}_+^* \quad (3.2)$$

Ces hypothèses peuvent être résumées par la relation :

$$t_{perc} = \frac{K}{C d_m^\Psi}, \Psi \in \mathbb{R}_+^* \quad (3.3)$$

K étant une constante dépendant des paramètres expérimentaux (température, pression, débit de l'écoulement...) supposés constants et identiques pour chacune des séquences expérimentales. Afin de déterminer Ψ et K , la méthode des moindres carrés a été utilisée à partir des données pour d_m compris entre 60 nm et 100 nm. Notons que si les points pour $d_m = 150$ nm sont intégrés, les résultats sont globalement mauvais sur toute la gamme de diamètre. Dans le cadre de nos hypothèses, les valeurs des constantes sont donc :

Ψ	K
0.86	4.6×10^9

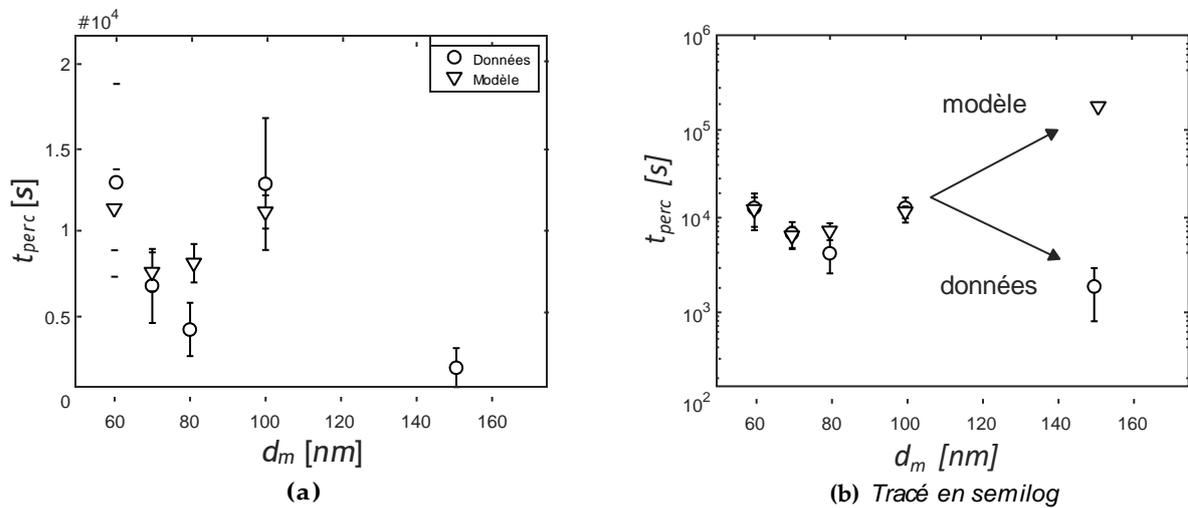


Figure 3.13 – Comparaison du modèle et des données expérimentales de $t_{perc} = f(C, d_m)$.

La Figure 3.13 représente les temps de percolation moyens issus du modèle et des mesures. Des barres d'erreurs figurent aussi sur les points issus du modèle car pour un même diamètre de mobilité, la concentration varie (*cf.* Annexe A). Remarquons que la faible reproductibilité et le faible nombre de données expérimentales conduit à une dispersion importante, ce qui ne facilite pas l'identification d'une corrélation. Il faut donc rester prudent quant aux valeurs numériques des paramètres Ψ et K .

Remarquons d'abord que le point expérimental pour $d_m = 80 \text{ nm}$ est un peu sousévalué par rapport au modèle, bien que les barres d'erreur se superposent en partie. Ceci peut s'expliquer par le faible effectif de mesures en comparaison des points $d_m = 70 \text{ nm}$ et $d_m = 100 \text{ nm}$, ce qui influence la valeur de la moyenne des carrés, qui est minimisée par la méthode utilisée pour choisir Ψ et K .

Une autre remarque est que le point $d_m = 150 \text{ nm}$ ne s'intègre pas à la tendance calculée à partir des diamètres inférieurs. L'échelle logarithmique de la Figure 3.13 (b) permet de mieux visualiser l'écart entre le modèle et les mesures expérimentales. A partir de cette observation, il semblerait que les hypothèses utilisées pour calculer le modèle ne peuvent pas être utilisées pour le diamètre de mobilité électrique $d_m = 150 \text{ nm}$. Il est également possible que l'exposant ψ varie avec la taille des particules. Dans ces deux hypothèses, la physique de la construction des ponts semble varier avec la taille des particules ce qui pourrait s'expliquer par le mécanisme diélectrophorétique, dont la norme de la force varie avec le cube du diamètre des particules.

Il faut toutefois rester prudent en ce qui concerne les conclusions tirées à partir de ces deux points car leur faible effectif leur confère peu de poids sur le plan statistique. Il est donc indispensable de réaliser des mesures supplémentaires pour des diamètres compris entre $d_m = 80 \text{ nm}$ et 200 nm pour valider ou infirmer cette hypothèse.

3.3.6 Observation du dépôt

Pour améliorer la compréhension des phénomènes de captation, des clichés réalisés avec un microscope électronique à balayage (MEB) ont été réalisés. Les capteurs sont suffisamment conducteurs pour ne pas avoir recours à la métallisation, ce qui a deux avantages. Premièrement, la méthode n'est pas destructrice. Le capteur peut donc être observé au MEB puis réutilisé. Deuxièmement, il y a moins de risques d'endommager les micro-structures de suie lors de l'opération de métallisation.

Dépôt périodique

Sur la Figure 3.14, on distingue les électrodes à un faible grossissement. Les niveaux de gris varient en fonction de la nature du matériau. Les électrodes les plus claires correspondent à un dépôt important de particules et les électrodes les plus foncées à un dépôt moindre. Remarquons l'alternance de deux électrodes chargées et de deux électrodes qui le sont moins. Il est possible d'en déduire la polarisation des électrodes : celles qui sont chargées en particules correspondent aux électrodes polarisées par la tension $V_{pol} = -19 \text{ V}$. Les autres sont les électrodes de masse. En effet, contrairement à l'aérosol issu du mini-CAST, celui transmis par le DMA est composé de particules de même mobilité électrique et portent donc des charges de même signe. Elles sont en l'occurrence positives. Par électrophorèse, comme nous le verrons dans le Chapitre 4, les particules positives sont naturellement attirées par les électrodes de signe opposé. Cette observation apporte une preuve que le dispositif expérimental transmet effectivement au capteur, un aérosol dont les particules ont une charge de signe homogène. Cette tendance peut aussi être observée avec une

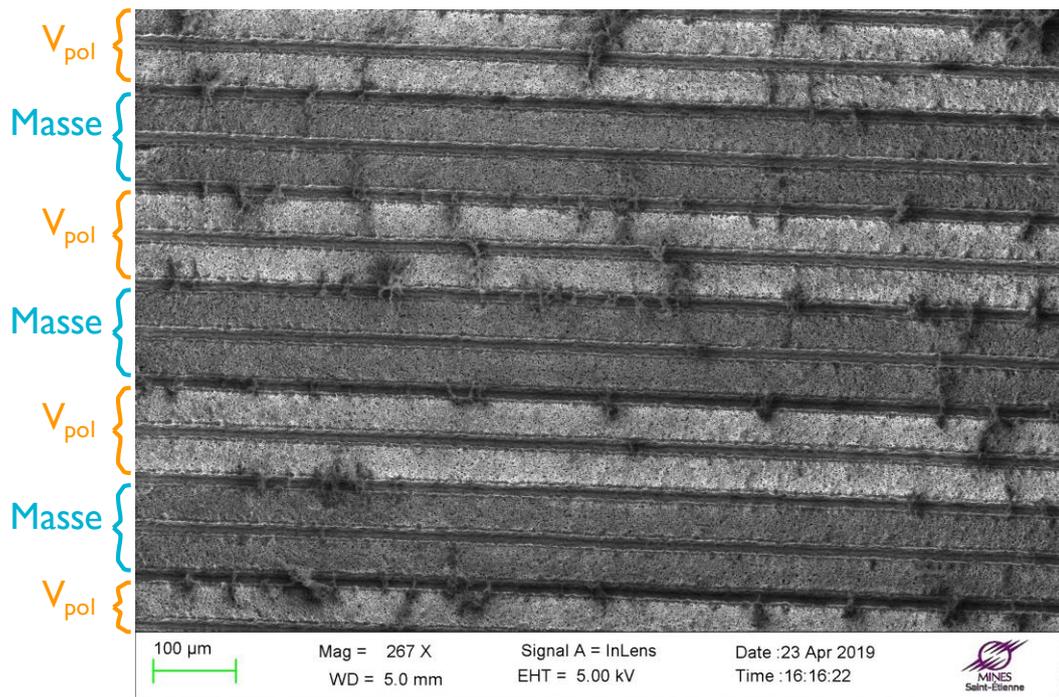


Figure 3.14 – Dépôt d'un aérosol monodisperse et portant des charges de même signe sur les électrodes du capteur résistif ($d_m = 150$ nm, polarisation continue de tension $V_{pol} = -19$ V).

simple loupe (cf. Annexe B). Enfin, on peut distinguer que la plupart des structures reliant les électrodes entre elles sont entre des électrodes de polarisation différente (masse et V_{pol}). Il s'agit des ponts dont la contribution à la conductance de l'élément sensible est mesurée.

Ponts et dendrites

Enfin, sur la Figure 3.15, on peut voir des exemples de ponts reliant deux électrodes avec un fort grossissement. Sur ces images, on distingue la complexité des structures formées par les nano-particules : les bases, de part et d'autre du fossé, sont robustes et trapues et s'étendent au-dessus de l'inter-électrodes en un filament de quelques dizaines de nanomètres de diamètre (cf. Figure 3.15 (a)), voire de quelques micromètres de diamètre (cf. Figure 3.15 (b)). Ceci illustre la diversité de la morphologie des ponts de particules.

Il est difficile de tirer des conclusions sur la dynamique de construction des ponts à partir de ces clichés. Il semblerait toutefois que dans le cas d'un aérosol chargé positivement, les ponts initient leur croissance depuis l'électrode polarisée vers l'électrode de masse (cf. Figure 3.15 (b)). Le mécanisme responsable de ce phénomène est l'électrophorèse, c'est-à-dire la migration des particules sous l'action de la force de Coulomb.

Toutefois, les bases des ponts sont massives de part et d'autres de l'espace inter-électrodes. Ce phénomène est difficilement explicable par l'action de l'électrophorèse seule. En effet, les particules positives étant repoussées par l'électrode masse,

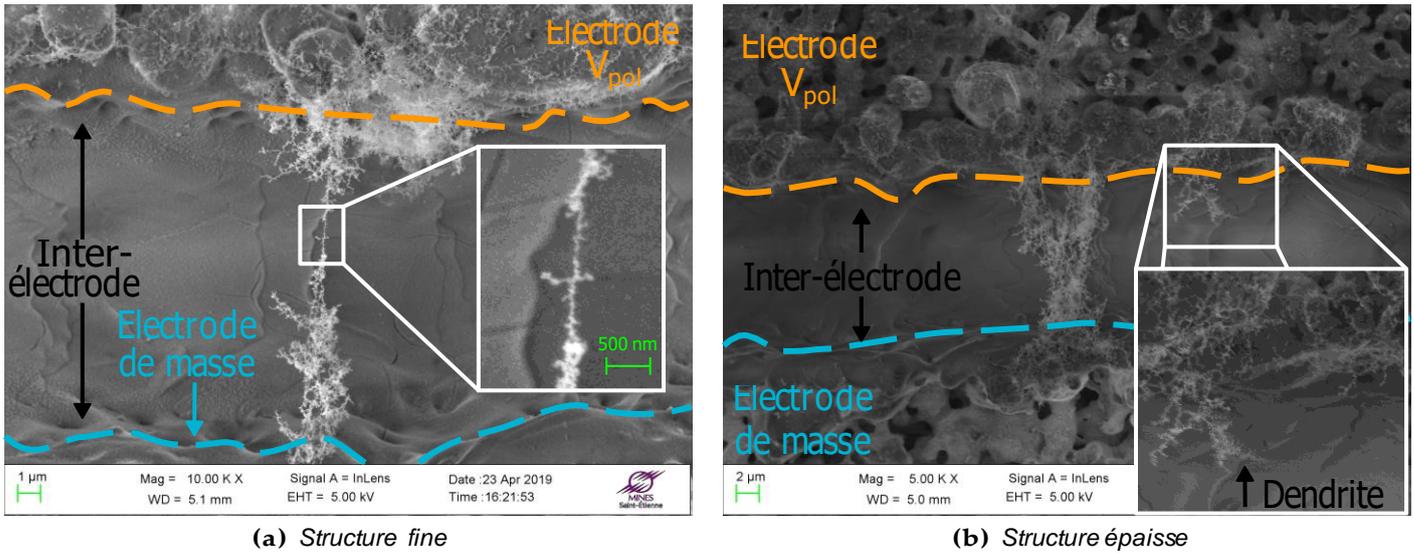


Figure 3.15 – Exemples de ponts reliant les électrodes du capteur ($d_m = 150$ nm, polarisation continue de tension $V_{pol} = -19$ V).

il est peu probable qu'elles se déposent massivement sur celle-ci pendant ou après la formation du pont. Le mécanisme de diélectrophorèse, en revanche, est indépendant du signe des particules et les attire inconditionnellement vers les zones de haut gradient (cf. Section 4.4). En effet, nous avons vu que $F_{DEP} \propto -\nabla E^2$. Sur cette base, une phénoménologie de la construction des ponts de suie sur le capteur résistif est proposée sur la Figure 3.16.

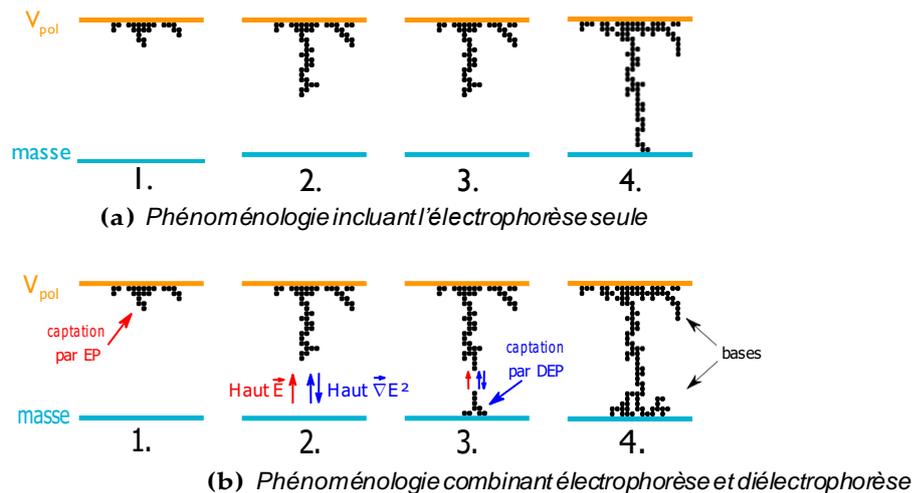


Figure 3.16 – Construction de pont par électrophorèse et diélectrophorèse.

La construction de ces structures sera simulée dans le Chapitre 4 pour mieux comprendre les mécanismes qui en sont responsables. En effet, leur compréhension est susceptible de donner accès à des informations morphologiques (nombre et taille moyenne des particules composant un pont). Couplées avec les informations ciné-

tiques globales contenues dans le signal du capteur (fréquence de construction des ponts), il serait alors possible de caractériser plus précisément un écoulement de particules.

3.4 Oxydation des suies à la surface du capteur

3.4.1 Hypothèses

Dans la section précédente, nous nous sommes intéressés à la réponse d'un capteur à un aérosol monodisperse et de charge homogène. Nous avons vu que les ponts augmentaient la conductance de l'élément sensible par paliers et nous avons observé que le signal présentait une diminution plus ou moins marquée après chacun de ces événements. Le but du modèle de compréhension développé ici est de donner une explication à ce phénomène. Le modèle thermique est basé sur le travail présenté par Grondin *et al.* [8].

L'hypothèse sur laquelle ces simulations reposent est que la décroissance du signal est due à une érosion surfacique des micro-structures. La décroissance lente du signal permet d'écarter les phénomènes thermiques (conduction, convection, pertes radiatives) et électriques (effet Joule) puisque les temps caractéristiques de ces phénomènes sont de l'ordre de la nano-seconde. Nous nous sommes donc intéressés à la réactivité chimique des suies, et en particulier à leur oxydation à basse température. En effet, Sediako *et al.* [116] montrent qu'individuellement, les suies s'oxydent à 550 °C. Dans leur article, Sediako *et al.* montrent également que le temps caractéristique avec lequel le diamètre des sphérules évolue est de l'ordre du quart d'heure, ce qui se rapproche de nos observations. Nous verrons que les nano-structures peuvent en effet atteindre des températures équivalentes grâce aux dissipations thermiques par effet Joule.

3.4.2 Modèle

Système

Un pont de suie est modélisé par un cylindre compact. D'après la littérature [117, 118], la réactivité des suies n'est pas homogène. Une proportion de la masse des suies serait en effet plus réactive à l'oxydation, comme le représente la Figure 3.17. L'énergie d'activation E_1^* caractérise la masse la plus réactive, et E_2^* la moins réactive. Le domaine est discrétisé pour y résoudre l'équation de la chaleur, calculer la température de chaque élément et en déduire la masse de suie oxydée.

Modèle cinétique

D'après Huguet *et al.* [117], l'oxydation des suies peut être modélisée par deux processus partiels.



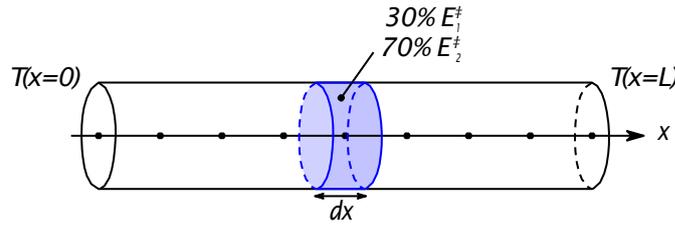


Figure 3.17 – Modélisation d'un pont de suie.

C_1 et C_2 sont les fractions de carbone de réactivité différentes. Pour modéliser l'oxydation des ponts de suie, une loi d'Arrhenius a été utilisée :

$$\frac{dm}{dt}(x, t) = \sum_{i=1}^2 c_i k_{0,i} m(x, t)^{\alpha} P_{O_2}^{\beta} e^{-\frac{E_i^{\ddagger}}{RT(x,t)}} \quad (3.5)$$

Où $k_{0,i}$ est le coefficient pré-exponentiel déterminé expérimentalement, P_{O_2} la pression partielle de dioxygène, $m(x, t)$ la masse de carbone, c_i la contribution du processus partiel à la perte de masse totale. α et β sont les ordres des réactions en oxygène et en carbone. Ce sont des constantes déterminées expérimentalement.

Modèle thermique

D'après la relation (3.5), l'oxydation dépend de la température. Pour calculer $\frac{dm}{dt}$, il faut résoudre l'équation de la chaleur sur le domaine de calcul.

$$\frac{\delta Q}{dt} = m(x, t) C_p \frac{\partial T(x, t)}{\partial t} = P_{cond} + P_{conv} + P_{rad} + P_{Joule} + P_{ox} \quad (3.6)$$

Avec C_p la capacité calorifique des suies (supposée homogène) et δQ la chaleur échangée par un élément avec le milieu extérieur. Dans le bilan thermique, nous avons tenu compte de la conductivité P_{cond} , de la convection P_{conv} , des pertes radiatives P_{rad} , des pertes par effet Joule P_{Joule} et de la puissance fournie par l'oxydation (exothermique) P_{ox} .

Imbrication des modèles

Il faut environ 0.1 ns pour que le cylindre atteigne son état stationnaire thermique (cf. Annexe J). Or, le temps caractéristique de l'oxydation est de l'ordre de la minute. Deux pas de temps ont donc été utilisés afin de calculer l'état stationnaire thermique entre deux calculs de perte de masse par oxydation. Le modèle thermique est par conséquent imbriqué dans le modèle de cinétique chimique. Les informations complémentaires (valeurs des constantes physiques et chimiques, méthodologie numérique) ont été rédigées dans l'Annexe J.

3.4.3 Résultats

Ces calculs permettent d'obtenir directement la température $T(x, t)$ et la perte de masse $dm(x, t)$. On peut en déduire le rayon $r(x, t)$ du pont, et sa résistance par

la relation :

$$R(x, t) = \frac{\rho_e}{1 - \alpha(T(x, t) - T_0)} \frac{dx}{S(x, t)} \quad (3.7)$$

Où ρ_e est la résistivité du cylindre, dx la taille de la maille, $S(x, t)$ sa section droite et α le coefficient de température. Sur la Figure 3.18, on peut voir que les grandeurs évoluent rapidement au début de la simulation ($t < 500$ s). Une discontinuité dans la pente intervient à des temps plus long et la vitesse d'évolution diminue. Pour le rayon, on peut voir que la masse de suie la plus réactive est rapidement consommée au milieu du cylindre. La masse de suie la moins réactive a donc un effet stabilisateur (à court terme) sur le rayon comme sur la température. En effet plus le rayon diminue, plus l'effet Joule est important (car pour chaque élément cylindrique $P_{Joule}(x, t) = R(x, t)i(t)^2$), plus l'oxydation est promue et ainsi de suite. Les mécanismes sont les mêmes quelque soient les constantes cinétiques, mais l'érosion du cylindre est ralentie, ce qui tend à augmenter la durée de vie du pont.

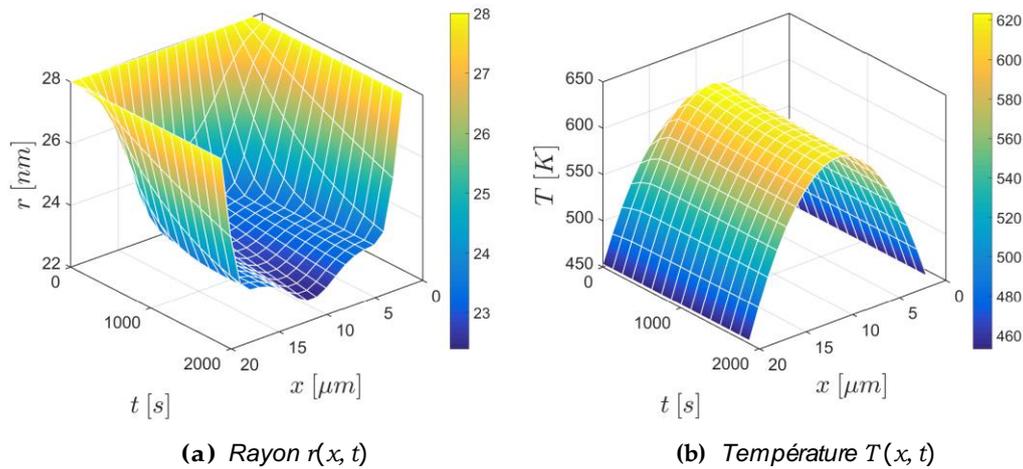


Figure 3.18 – Rayon et température du cylindre soumis à l'oxydation.

Dans ces simulations, les contributions de chaque processus c_1 et c_2 ainsi que les énergies d'activation ont été adaptées pour que l'évolution de la conductance du cylindre se rapproche des expériences (cf. Figure 3.19) mais reposent toutefois sur les valeurs de Huguet *et al.*, calculées pour des suies Diesel. Dans le cadre de nos hypothèses, les valeurs numériques choisies sont proches de celles mesurées expérimentalement (cf. Annexe J) et le comportement du modèle semble suivre le comportement observé. De plus, l'inhomogénéité en terme de réactivité des suies semble apporter une explication à la stabilisation du signal. Il s'agit toutefois d'un modèle simple et qui pourrait être amélioré, notamment grâce à une meilleure connaissance des propriétés physico-chimiques des suies utilisées dans notre protocole expérimental. De plus, une corrélation plus systématique avec les décroissances observées sur les signaux pourraient apporter des données statistiques intéressantes pour améliorer le modèle.

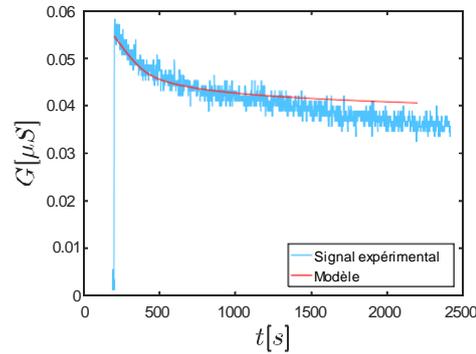


Figure 3.19 – Modélisation de la décroissance du signal pour un cas particulier. Ici, $V_{pol} = 30 \text{ V}$, $E_1^{\ddagger} = 63 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $E_2^{\ddagger} = 165 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $c_1 = 0.3$ et $c_2 = 0.7$.

3.5 Classification aérodynamique

La classification électrostatique a permis d'établir une corrélation entre la taille des particules et le temps de percolation (pour $d_m \in [60; 80] \text{ nm}$). Toutefois, l'aérosol généré étant peu concentré, le capteur a répondu avec une certaine dispersion dans ses signaux. De plus, l'aérosol classifié par le DMA est constitué de particules dont la charge électrique est de même signe, ce qui n'est pas le cas des aérosols de suie en conditions réelles, après une combustion de type Diesel notamment. Des essais ont pu être réalisés en classifiant l'aérosol du mini-CAST grâce à un autre principe physique. L'AAC conserve en effet la distribution de Boltzmann dans l'aérosol qu'il transmet, modélisant de façon plus réaliste les conditions réelles (cf. Section 2.5.2).

3.5.1 Choix des diamètres et impact de la concentration

Dans cette approche, les diamètres aérodynamiques $d_a = 50 \text{ nm}$ et $d_a = 70 \text{ nm}$ ont été étudiés. Ils ont été choisis pour leurs concentrations proches (cf. Section 2.5.2), se trouvant de part et d'autre du diamètre médian de la fonction de distribution granulométrique. Toutefois, la concentration pour ces deux points n'est pas strictement égale et les résultats présentés plus bas pourraient être imputés à cette différence. Comme nous l'avons vu précédemment, une baisse de la concentration a tendance à augmenter le temps de percolation. Or dans cette étude, les concentrations sont telles que $C(50 \text{ nm}) > C(70 \text{ nm})$ (cf. Table 2.3). Si la concentration de l'aérosol prédominait, nous observerions par conséquent que $t_{perc}(50 \text{ nm}) < t_{perc}(70 \text{ nm})$. Or, la Figure 3.20 montre une tendance opposée. Ainsi, et comme pour les diamètres de mobilité $d_m = \{60; 70; 80\} \text{ nm}$, la taille des particules (ici le diamètre aérodynamique d_a) est prédominante sur la concentration. Pour autant, ceci ne signifie pas que l'influence de la concentration est négligeable devant celle du diamètre aérodynamique, mais on peut déduire de ces mesures que la taille des particules a bien une influence sur le signal du capteur.

Enfin, comme cela a été évoqué dans le Chapitre 2, le niveau de concentration de l'aérosol monodisperse généré par l'AAC est 45 fois supérieur à celui généré par le DMA (dans les conditions d'utilisation respectives des deux analyseurs). Ceci

induit des signaux différents, en particulier du point de vue de la reproductibilité. En effet, deux mesures ont été réalisées pour chaque diamètre aérodynamique et on peut constater que la reproductibilité du signal s'en trouve sensiblement améliorée. Néanmoins, en s'intéressant au signal lors de la formation des premiers ponts (cf. Figure 3.20 (b)), on peut remarquer que l'allure des courbes est proche des réponses obtenues avec le DMA, ce qui valide les méthodes de classification. Elles sont en effet composées de sauts de conductance discrets et aléatoires. La concentration est par conséquent suffisamment faible pour distinguer nettement la contribution de chaque pont à la conductance du capteur.

3.5.2 Temps de percolation

La Figure 3.20 révèle les signaux du capteur soumis à l'aérosol classifié par l'AAC. Deux diamètres aérodynamiques ont été étudiés : 50 nm et 70 nm. De plus, la tension de polarisation a cette fois été fixée à $V_{pol} = 60 V$ car il s'agit de la tension de captation optimale d'après Grondin *et al.* [8] pour le point de fonctionnement du mini-CAST utilisé ici. Deux signaux ont été enregistrés dans chaque condition, ce qui montre une reproductibilité relativement bonne en comparaison des réponses du capteur soumis à l'aérosol classifié électrostatiquement.

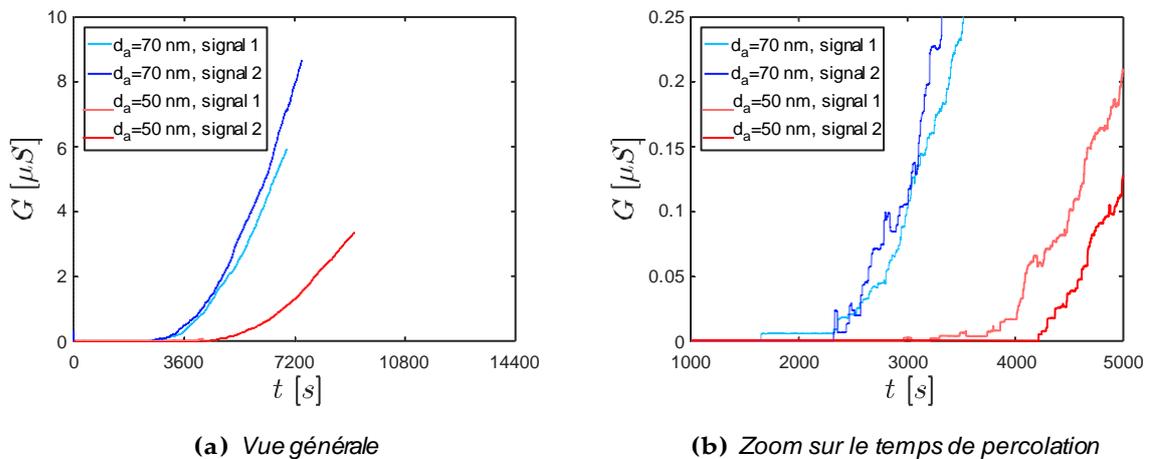


Figure 3.20 – Réponse d'un capteur à un aérosol classifié par un AAC ($V_{pol} = 60 V$).

Le temps de percolation, pour chacun des signaux est restitué dans la Table 3.1. De façon générale, la percolation est plus rapide que lors des essais mettant en jeu la classification électrostatique. Ceci s'explique par les niveaux de concentration plus élevés lors de la classification aérodynamique (cf. Section 2.5.2). Enfin, le temps de percolation varie avec le diamètre aérodynamique des particules : plus les particules sont fines, plus le temps de percolation augmente. On montre en effet que la probabilité qu'il y ait une différence significative est de 93.6%². Cette tendance est la même que celle qui avait été mise en évidence par une classification électrostatique (cf. Section 3.3). Par conséquent, deux dispositifs expérimentaux reposant sur des principes physiques distincts tendent vers la même conclusion.

2. Valeur calculée grâce à un test d'hypothèse [119].

Diamètre [nm]	t _{perc} [s]	Moyenne [s]
70	1652	1986
70	2320	
50	3215	3716
50	4217	

Table 3.1 – Temps de percolation pour la classification aérodynamique.

3.5.3 Taux d'accroissement de la conductance

Traitement du signal

Ces signaux permettent de calculer une grandeur qui restait difficilement accessible avec une classification électrostatique : la pente des signaux. Comme il ne s'agit pas de signaux linéaires, la dérivée sera calculée à chaque pas de temps. A l'ordre 1, elle peut être exprimée par le taux d'accroissement :

$$\frac{dG}{dt}_i = \frac{G_{i+dt/2} - G_{i-dt/2}}{dt} \quad (3.8)$$

Avec dt un paramètre permettant de moyenner le calcul de la dérivée. Dans ce cas, nous prendrons $dt=500$ s, du fait du bruit important qui perturbe les signaux.

Résultats

La Figure 3.21 représente la dérivée des signaux de la Figure 3.20. La valeur du taux d'accroissement évolue rapidement pour $d_a = 70$ nm, sans se stabiliser sur la durée étudiée (environ deux heures). Pour $d_a = 50$ nm, les temps d'acquisition sont plus longs et il est possible d'observer la stabilisation de la dérivée, en particulier pour le signal 1. Ceci traduit le fait que le signal soit sigmoïdal.

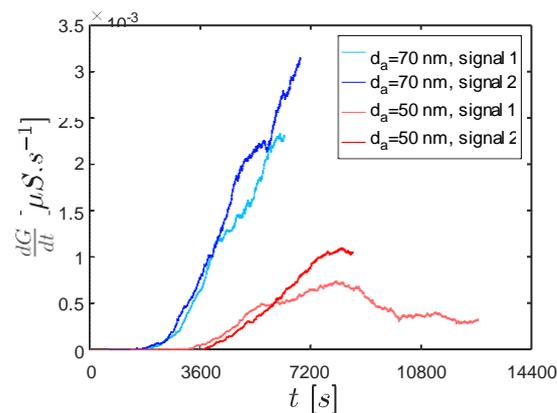


Figure 3.21 – Dérivées des signaux.

De façon générale, la dérivée augmente d'autant plus rapidement que le diamètre aérodynamique est important, ce qui peut s'expliquer par deux phénomènes :

- la fréquence de construction des ponts est plus élevée ;
- la contribution des ponts à la conductance du capteur est plus élevée.

D'après l'analyse du temps de percolation, traduisant la vitesse de construction du premier pont, il semblerait que la fréquence de construction augmente effectivement avec le diamètre (d_a ou d_m) des particules. Cette tendance a en effet déjà été observée dans le cas d'une classification électrostatique, on la retrouve également par une classification aérodynamique. Cette théorie est toutefois pondérée par l'analyse des sauts de conductance dans la Section 3.5.4.

Enfin, supposons que plus le diamètre des particules est important, plus la section de passage du courant électrique à travers les ponts est élevée. Dans ce cas de figure, il est cohérent d'attendre une population de ponts dont la conductance est supérieure si $d_a = 70 \text{ nm}$. Une étude plus spécifique est menée dans la Section 3.5.4.

3.5.4 Conductance des ponts

Traitement du signal

Les sauts de conductance sont des discontinuités dans le signal du capteur. A ce titre, la dérivée du signal est un bon moyen de les détecter. En effet, pour chaque discontinuité du signal, un pic de sa dérivée est observé. Pour chaque signal, nous avons calculé sa dérivée pour $dt = 1 \text{ s}$ (cf. Equation (3.8)) afin de mettre en évidence toutes les discontinuités. En effet, cette fois nous cherchons à étudier le caractère local de la dérivée, et non sa tendance globale comme dans le paragraphe précédent. Puis, la pente de base de la dérivée est retranchée afin d'obtenir une fonction constante dont les pics sont facilement détectables grâce à une valeur seuil. Cette méthode est détaillée dans l'Annexe D. Enfin, chaque discontinuité est caractérisée par son instant d'occurrence et son amplitude.

Résultats

Sur la Figure 3.22 ont été représentés les probabilités des sauts de conductance en fonction de leur amplitude. Cette opération a été réalisée pour les quatre signaux présentés précédemment et la couleur des histogrammes est assortie à celle des signaux de la Figure 3.20. Les signaux ont été analysés à partir du temps de percolation jusqu'à une heure plus tard. Les histogrammes montrent que l'ordre de grandeur des sauts est de quelques nS . Dans la Table 3.2, nous avons reporté les statistiques correspondant à chacun des signaux. Remarquons d'abord que la population des sauts de conductance dépend du diamètre aérodynamique. En effet, pour les deux signaux enregistrés avec $d_a = 50 \text{ nm}$, la moyenne est de 3.69 nS . La valeur moyenne pour $d_a = 70 \text{ nm}$ est légèrement supérieure, puisqu'elle vaut 7.55 nS . De plus, la dispersion des distributions est plus resserrée pour $d_a = 50 \text{ nm}$. La probabilité pour que la différence entre les moyennes de la hauteur des sauts de conductance soit significative est de 80.0% ³.

3. Valeur calculée grâce à un test d'hypothèse [119].

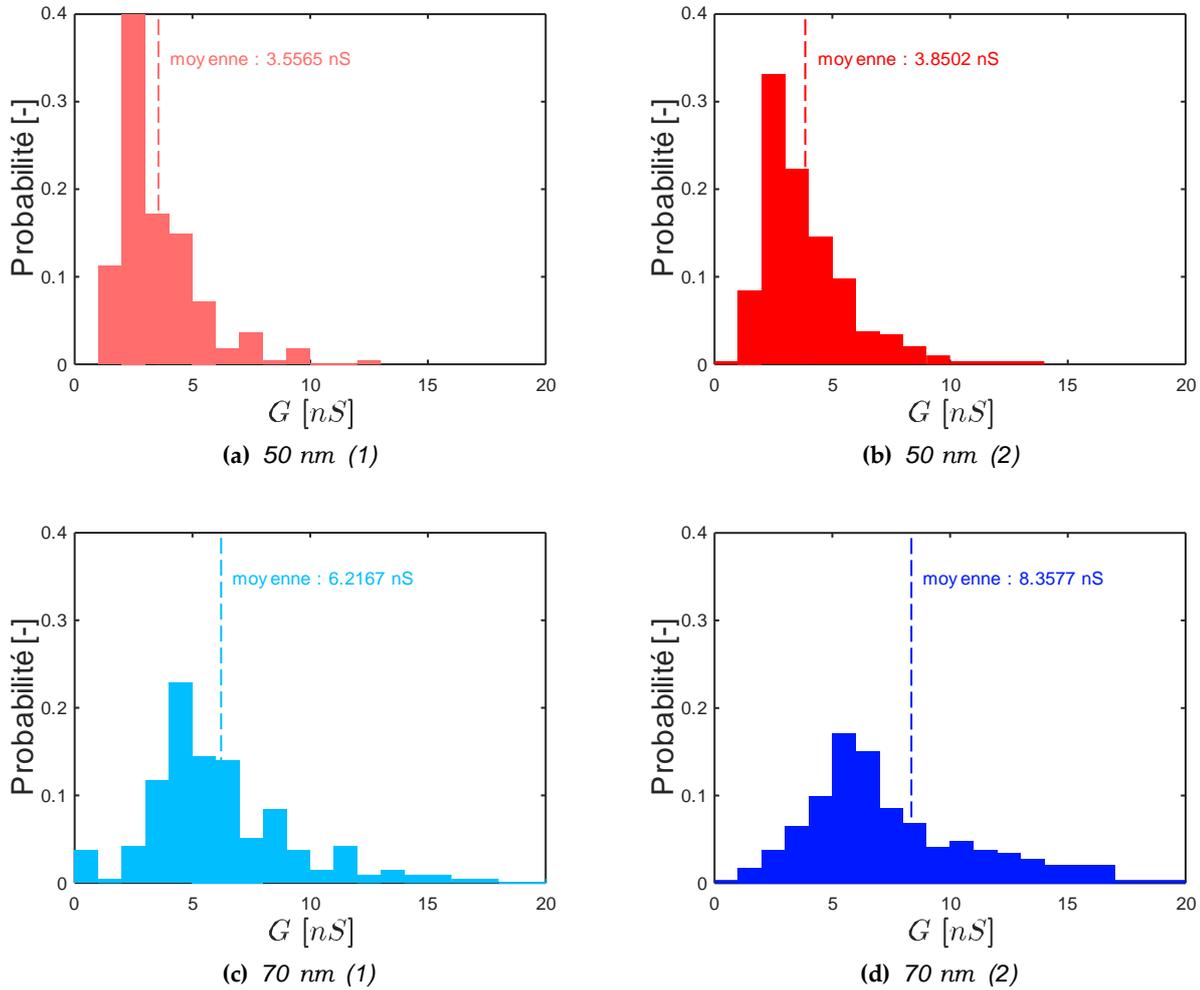


Figure 3.22 – Probabilités des sauts de conductance pour deux diamètres aérodynamiques.

Diamètre [nm]	Moyenne [nS]	Médiane [nS]	Écart-type [nS]	Fréquence [Hz]
70	6.2167	5.3213	3.3305	0.059
70	8.3577	6.6026	5.8380	0.081
50	3.5565	2.8946	1.7771	0.062
50	3.8502	3.2314	1.9270	0.082

Table 3.2 – Données statistiques pour les sauts de conductance pendant une heure après le temps de percolation.

Les mécanismes expliquant cette tendance peuvent être de natures différentes. On peut mentionner les propriétés géométriques des particules. Les particules de $d_a = 70 \text{ nm}$ forment probablement, en moyenne, des structures plus massives pour relier les électrodes entre elles. La section efficace des structures serait alors plus importante, permettant au courant de les traverser plus aisément. Autrement dit, la conductance d'un pont augmenterait avec le diamètre des particules qui le composent. La conductance mesurée peut aussi être impactée par la quantité de ramifica-

tions d'un pont, ce qui implique une multiplication du nombre de points de contacts et donc plus de chemins conductifs. Cette dernière interprétation semble plus plausible. En effet, les particules sont constituées de sphérules dont le diamètre dépend peu du diamètre de mobilité. L'aire de contact entre les sphérules (invocée dans la première hypothèse) ne devrait donc pas évoluer avec le diamètre de mobilité.

Enfin, la fréquence des sauts détectés ne semble pas être influencée par la taille des particules (*cf.* Table 3.2). Cette remarque doit toutefois être faite avec prudence. En effet, la détection des sauts est sensible à l'amplitude du bruit du signal, et il n'est pas possible de détecter raisonnablement des sauts de conductance inférieure à $1 nS$. Or, sur les Figures 3.22 (a) et (b), on ne distingue pas clairement le maximum des distributions de conductance. Il est donc possible qu'une proportion non-négligeable des sauts reste invisible à l'algorithme, induisant par conséquent une erreur sur le calcul de la fréquence d'apparition des sauts. De plus, le fait que cette fréquence ne dépende pas de la taille des particules est en contradiction avec l'observation selon laquelle le temps de percolation en dépende.

3.6 Conclusion sur la classification des aérosols

L'objectif de l'approche expérimentale était d'étudier la sensibilité du capteur résistif à la taille des particules. En effet, pour mesurer une concentration en nombre de particules, il est indispensable que le capteur soit sensible aux particules dont le diamètre est inférieur à $100 nm$ (*cf.* Section 1.4.2). Pour étudier cette sensibilité, deux dispositifs de classification ont été utilisés (*cf.* Chapitre 2).

La classification électrostatique a révélé des réponses composées de sauts de conductance rares et aléatoires, ce qui s'explique par la faible concentration ($1.02 - 12.7 \times 10^3 \text{ part./cm}^3$) de l'aérosol après l'étape de classification ($60 - 150 nm$). Grâce à l'analyse du temps de percolation, une tendance a pu être dégagée lorsque la concentration a une valeur proche ($60 - 80 nm$). Dans cet intervalle, le temps de percolation augmente lorsque le diamètre de mobilité diminue. Toutefois, les points $d_m = 100 nm$ et $d_m = 150 nm$ ne suivent pas cette tendance compte tenu du fait que le diamètre est intrinsèquement lié à la concentration par la fonction de distribution du diamètre de mobilité. Un modèle comportemental pour découpler la concentration et le diamètre de mobilité a donc été utilisé grâce à une relation de la forme :

$$t_{perc} = \frac{K}{C \Phi d_m^{\#}} \quad (3.9)$$

Il faut néanmoins rester prudent quant aux valeurs numériques étant donnée la faible reproductibilité des signaux et les faibles effectifs statistiques. Dans cette approche, le point $d_m = 150 nm$ ne s'intègre pas au modèle (3.9), ce qui laisse supposer que les mécanismes de captations pourraient différer en comparaison des diamètres de mobilité moins importants ($60 - 100 nm$). La diélectrophorèse pourrait expliquer ce phénomène car sa norme dépend fortement du diamètre des particules.

En plus des sauts de conductance, la plupart des signaux se caractérise par une lente décroissance de la conductance après chaque saut, qui est observable si la concentration est suffisamment faible. Pour comprendre ce phénomène, un modèle de

compréhension tenant compte de la thermique des ponts et de la réaction d'oxydation a été développé. La décroissance des signaux s'expliquerait par la composition chimique hétérogène des particules de suie, modélisée ici par deux fractions massiques de constantes cinétiques différentes. Dans la littérature, Sediako *et al.* [116] montrent que les suies peuvent être constituées d'une enveloppe réactive et d'un noyau moins sensible à l'oxydation.

La classification aérodynamique (50 et 70 nm) mettant en jeu des concentrations plus importantes ($4.2 - 5.6 \times 10^5 \text{ part./cm}^3$), a donné lieu à une reproductibilité accrue et à des réponses plus rapides. Pour les deux diamètres aérodynamiques testés, il a été montré que le temps de percolation augmente lorsque le diamètre aérodynamique diminue. Ce résultat est par conséquent cohérent avec ceux obtenus grâce à une classification électrostatique. De plus, la hauteur des sauts de conductance a été étudiée, ce qui a révélé une dépendance par rapport au diamètre aérodynamique. L'amplitude des sauts de conductance augmente avec le diamètre aérodynamique.

Ces résultats montrent donc que le capteur dispose d'une sensibilité suffisante pour détecter les particules qui contribuent le plus à la concentration en nombre. Il s'agit donc de la validation d'un premier jalon pour la faisabilité d'une approche nombre. Toutefois, ce capteur semble particulièrement sensible aux particules de plus haut diamètre, ce qui pourrait « masquer » la contribution des particules les plus fines. Pour répondre à cette problématique, une méthode pourrait être de classer les particules avant leur dépôt sur les électrodes grâce à des conceptions d'électrodes ou de nez de capteur judicieusement choisies. Ceci permettrait de distinguer l'effet de la taille (connue) de l'effet de la concentration.

Enfin, des essais sous tension alternative ont été réalisés dans l'objectif de mieux comprendre l'importance des différents phénomènes de captation (effets aérodynamique, électrophorétique et diélectrophorétique). Ces essais ont été réalisés pour des aérosols polydispersés et monodispersés. Dans ces différents cas, les essais n'ont pas montré d'influence de la fréquence de polarisation sur le signal. Après avoir fait un inventaire des mécanismes susceptibles de conduire à cette conséquence, plusieurs causes ont été dégagées. Une fréquence (50 kHz) ou une tension (19 V) trop faibles pour repousser les particules efficacement sont les principales. Toutefois, l'action de la diélectrophorèse, ne dépendant pas du signe de la polarisation, pourrait aussi expliquer ces résultats.

Le chapitre suivant présente un modèle destiné à mieux comprendre les différents mécanismes de captation en jeu au voisinage des électrodes du capteur. En particulier, l'accent a été mis sur l'influence de la taille des particules sur la réponse du capteur. Autrement dit, le modèle est destiné à mieux comprendre les résultats obtenus grâce à la classification des particules de suie.

Chapitre 4

Simulation de la captation des particules de suies

Dans le chapitre précédent, l'influence de la taille des particules sur la réponse du capteur a été mise en évidence. Dans ce chapitre, différentes forces et mécanismes agissant sur les particules de suie seront investigués. Les premières étapes consistent en la définition des conditions aux limites (à l'échelle des électrodes) afin de poser un cadre physique proche du dispositif expérimental présenté dans le Chapitre 2. Une approche lagrangienne a été développée et comprend l'interaction coulombienne, la force aérodynamique, la diffusion brownienne et la force diélectrophorétique. Cette dernière est importante car les gradients de champ électrique en jeu sont forts au voisinage des électrodes. Grâce à cette approche, l'impact du diamètre des particules sur le dépôt sur les électrodes du capteur a été estimé, fournissant un premier argument pour expliquer les résultats du Chapitre 3. De plus, un modèle de croissance dendritique a été implémenté, montrant l'importance de la diélectrophorèse pour $d_p > 300$ nm.

4.1	Méthodologie	98
4.2	Champ de vitesses à l'échelle du capteur	100
4.3	Champ de vitesses à l'échelle des électrodes	104
4.4	Champ et forces électriques	110
4.5	Approche lagrangienne	114
4.6	Analyse cinématique	122
4.7	Croissance des dendrites	132
4.8	Facteur de forme des particules de suie	142
4.9	Electrorotation	148
4.10	Conclusion	152

4.1 Méthodologie

4.1.1 Introduction

Dans le Chapitre 3, le comportement du capteur de suie résistif soumis à différents aérosols mono-disperses a été étudié. Il a été mis en évidence que la vitesse de complétion des ponts de suie variait en fonction du diamètre des nanoparticules. Ceci fut d'abord expliqué par la contribution géométrique des particules. Toutefois, leur diamètre influence aussi leur dynamique : la migration de l'aérosol est affectée par sa distribution en taille avant même que les particules ne soient captées sur les électrodes. Ainsi, si l'approche expérimentale nous a apporté des réponses, elle a aussi soulevé de nombreuses questions. L'objectif de cette approche numérique et théorique est de comprendre le rôle de la taille des particules dans leur captation. Une compréhension plus fine des mécanismes en jeu est nécessaire pour concevoir un capteur plus performant.

Pour comprendre comment chacune de ces forces influence le dépôt des particules, un modèle de captation, inspiré par celui de Teike *et al.* [35], a été implémenté. Il a pour objectif de calculer la trajectoire des particules ainsi que leur accumulation sur les électrodes sous forme de dendrites. Il s'agit d'un modèle ayant pour objectif de mieux comprendre les phénomènes en jeu. Il ne s'agit donc pas d'un modèle prédictif. Avant de rentrer dans les détails de la physique et de l'implémentation, donnons une vue d'ensemble du modèle.

4.1.2 Approche lagrangienne

Pour étudier la trajectoire des nanoparticules, une approche lagrangienne a été utilisée. Dans une telle approche, l'observateur se place dans le référentiel du laboratoire (supposé galiléen) et s'intéresse aux propriétés des particules. Dans le cas d'un écoulement de particules, nous calculerons leurs positions et leurs vitesses grâce à l'équation du mouvement. Les forces agissant sur les particules sont calculées à chaque instant. Comme nous le verrons en détail dans la Section 4.5, elles comptent parmi elles la force de Coulomb et la force diélectrophorétique, qui dépendent du champ électrique à la position de la particule $E(\underline{x}(t))$. L'air exerce également une force de traînée, dépendant de la vitesse du fluide $\underline{u}(\underline{x}(t))$. Pour calculer la position des particules à l'instant $t+1$, il faut donc estimer le champ électrique et le champ aérodynamique au voisinage des électrodes à partir de la position de la particule à l'instant t .

4.1.3 Approche multi-échelles

La taille des dendrites que nous nous proposons de simuler est de l'ordre de l'espace inter-électrode, c'est-à-dire de $20 \mu m$. Pour simuler ce phénomène, le domaine numérique doit avoir une taille caractéristique comparable afin que les temps de calcul soient raisonnables. Or, pour les calculs de mécanique des fluides, les conditions aux limites à de telles échelles ne sont pas facilement accessibles. Afin de calculer ces conditions aux limites, et d'initier le calcul à l'échelle des électrodes, un calcul

à plus grande échelle doit être réalisé au préalable. Cette approche multiphysique du problème est décrite dans la Figure 4.1. Expérimentalement, le débit traversant la chambre du capteur est maîtrisée. C'est donc l'écoulement autour du capteur qui permettra de caractériser l'écoulement en premier lieu.

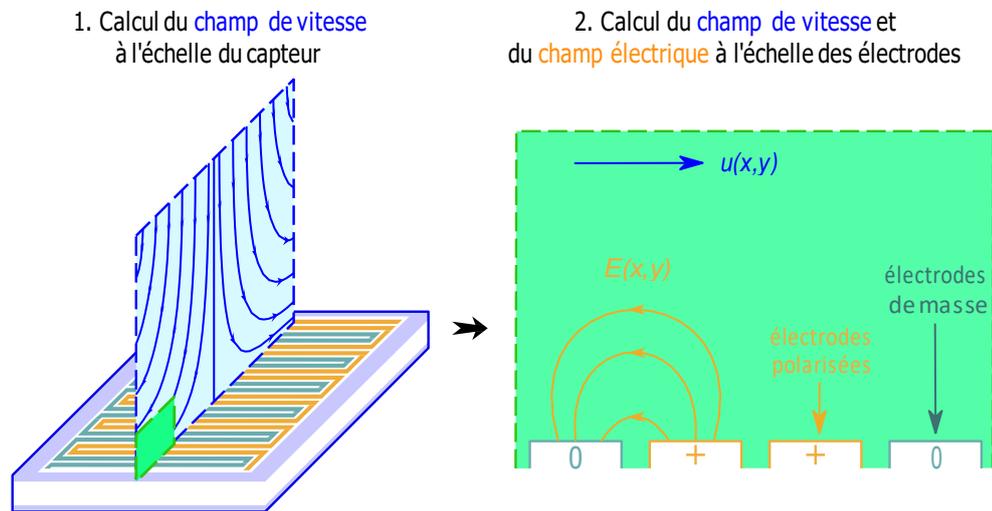


Figure 4.1 – Approche multiphysique pour le calcul en dynamique des fluides computationnelle.

A l'échelle du capteur, le champ de vitesse stationnaire a été calculé en 3D avec ANSYS Fluent et une méthode aux volumes finis (cf. Section 4.2). A l'échelle des électrodes, le calcul du champ de vitesse en 2D est intégré au suivi lagrangien et a été calculé avec une méthode de Boltzmann sur réseau (cf. Section 4.2).

4.1.4 Approche multi-physiques

Les forces générées à la fois par un champ électrique et un champ de vitesse nécessitent une approche multi-physique. Les particules sont supposées suffisamment fines et peu chargées pour ne pas influencer E et u . En revanche, leur dépôt sous forme de dendrites ou de ponts est considéré comme étant suffisamment important pour perturber à la fois l'écoulement et le champ électrique. En outre, Teike *et al.* ont montré qu'un couplage du dépôt des particules sur les électrodes avec l'électrostatique et le calcul de l'écoulement était indispensable pour modéliser la construction d'une dendrite entre les deux électrodes d'un capteur résistif. Le modèle de captation développé ici s'inspire donc de ces conclusions, comme le montre le diagramme logique de la Figure 4.2.

Le calcul est d'abord initialisé avec les paramètres physiques et géométriques (distance inter-électrode, tension de polarisation, vitesse de l'écoulement, etc.). La position des particules, ainsi que leur vitesse sont initialisées. Cette étape est appelée *pre-process*. Lorsque les particules sont injectées, le bilan des forces est calculé à chaque pas de temps pour en déduire leur position au pas suivant. Un test de collision entre les particules et les électrodes ou les dendrites croissantes est aussi accompli à chaque pas de temps. S'il s'avère positif, le champ de vitesse et le champ électrique

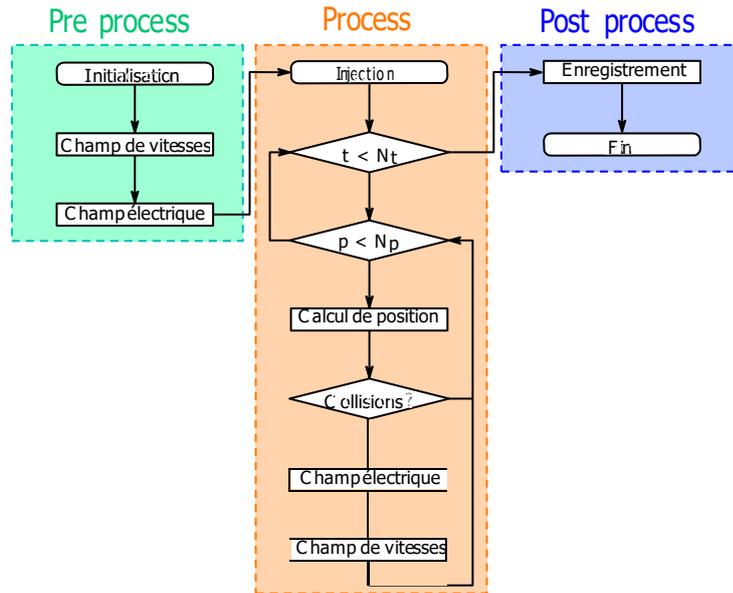


Figure 4.2 – Algorithme simplifié du modèle de captation.

sont mis à jour en tenant compte de l'influence du dépôt. Cette étape constitue le coeur du modèle, c'est le *process*. Les données d'intérêt sont enregistrées et post-traitées au cours du *post process*.

Le terme « modèle de dépôt » désigne l'implémentation de l'accumulation des particules sur la surface des électrodes (cf. Section 4.5.4). Le modèle de captation désigne quant à lui le calcul de trajectoire et le modèle de dépôt.

4.2 Champ de vitesses à l'échelle du capteur

L'étude de la dynamique des fluides au voisinage du capteur permet d'évaluer la force de traînée agissant sur les particules. Pour estimer le champ stationnaire de vitesse du gaz dans la chambre du capteur utilisée lors des expériences, nous avons eu recours à une simulation numérique macroscopique, de notre système complet. Ceci a permis de choisir des conditions aux limites réalistes pour les simulations numériques à l'échelle des électrodes (microscopique).

4.2.1 Méthodes numériques

Équations de Navier-Stokes Les équations de Navier-Stokes décrivent le comportement des fluides à travers leurs grandeurs macroscopiques (pression P , vitesse \underline{u} et masse volumique ρ). Sous leur forme tridimensionnelle, incompressible et isotherme, elles se présentent sous la forme de l'équation de continuité et de l'équation de bilan de la quantité de mouvement [120]. L'écoulement étant isotherme, l'équation de l'énergie n'est pas résolue.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \underline{u}) = 0 \quad (4.1)$$

$$\frac{\partial \rho \underline{u}}{\partial t} + \bar{\nabla} \cdot (\rho \underline{u} \underline{u}) = -\bar{\nabla} p + \bar{\nabla} \cdot \bar{\tau} + \rho \underline{g} + \bar{F} \quad (4.2)$$

Où \underline{u} désigne la vitesse, \bar{F} un terme de force volumique agissant sur l'écoulement et $\bar{\tau}$ le tenseur des contraintes. Ce dernier s'écrit :

$$\bar{\tau} = \eta_f \left(-\frac{\underline{u}}{\nabla} + -\frac{\underline{u}^T}{\nabla} \right) - \frac{2}{3} \bar{\nabla} \cdot (\underline{u} \underline{I}) \quad (4.3)$$

Où η_f est la viscosité dynamique du fluide et \underline{I} le tenseur unité.

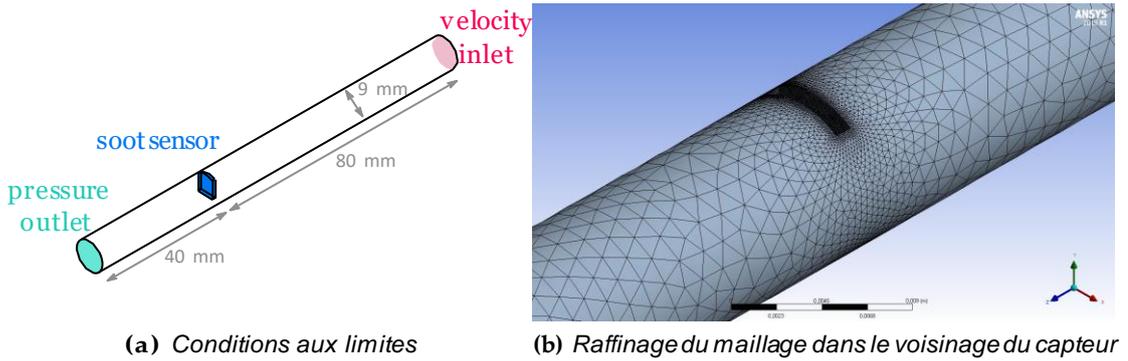


Figure 4.3 – Conditions aux limites, dimensions et maillage pour le calcul du champ stationnaire de vitesse à l'échelle du capteur.

Conditions aux limites Le domaine de calcul a été défini de façon à reproduire les conditions opératoires présentées dans le Chapitre 2. Ceci concerne les dimensions de la chambre du capteur, du capteur lui-même ainsi que la température de l'air. La vitesse moyenne de l'air dans un cylindre de 9 mm traversé par un débit de 1.5 l/min est de 0.4 m/s, invariant avec le temps. Cela constituera la condition de vitesse imposée à l'entrée du cylindre. A la sortie du cylindre, une pression relative nulle est imposée. Les parois du cylindre, ainsi que les faces du capteur sont caractérisées par une condition de non-glissement (cf. Figure 4.3). Pour de l'air à 180 °C, sa masse volumique est de $\rho_f = 0.7794 \text{ kg/m}^3$, sa viscosité cinématique est de $\nu_f = 3.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$, le nombre de Reynolds est donc de $Re = 110$. L'écoulement est par conséquent laminaire. Dans ces conditions, les équations de Navier-Stokes peuvent être simplifiées pour en faciliter la résolution. Les équations (4.1) et (4.2) dans le cas d'un écoulement tridimensionnel, stationnaire, laminaire et isotherme deviennent ainsi respectivement :

$$\bar{\nabla} \cdot \underline{u} = 0 \quad (4.4)$$

$$\rho \bar{\nabla} \cdot (\underline{u} \underline{u}) = -\bar{\nabla} p + \bar{\nabla} \cdot \bar{\tau} + \rho \underline{g} + \bar{F} \quad (4.5)$$

Solveur ANSYS Fluent dispose d'un solveur qui résout ces équations. Le solveur utilisé repose sur une méthode aux volumes finis, et un *pressure-based solver* a été choisi en particulier pour sa capacité à résoudre un écoulement incompressible (cf.

Annexe H). Les solutions étudiées dans la suite de ce travail convergent et le résidu est inférieur à 10^{-5} .

Maillage La géométrie a été réalisée avec l'outil DesignModeler, et le maillage a été conçu grâce à ANSYS Meshing. Le maillage est illustré par une vue isométrique focalisée sur la surface du support du capteur (cf. Figure 4.3), qui montre le raffinement. Sur cette surface, la taille caractéristique des mailles est fixée à $80 \mu m$ avec un taux de croissance de 1.2. En dehors de cette zone, la taille de base est de $6 mm$. Le maillage compte 85923 noeuds et 459 184 éléments.

4.2.2 Résultats

La Figure 4.4 (a) donne une vue d'ensemble de l'écoulement au voisinage du capteur. La norme de la vitesse y est représentée dans le plan yOz . Sur la Figure 4.4 (b), le champ des vitesses indique que le flux accélère sous le capteur, ce qui est dû à la réduction de la section de passage. L'écoulement décolle au niveau de la lèvre amont du capteur, résultant en une zone de recirculation derrière son support. La zone correspondant à l'élément sensible du capteur est située face au flux lors des essais. Il est représenté par le rectangle noir sur la Figure 4.4. C'est dans cette zone de l'écoulement sur laquelle nous avons porter notre attention. Sur la Figure 4.5, la norme de la vitesse du fluide a été tracée à $100 \mu m$ au-dessus de la surface du capteur. En particulier, les surfaces correspondant à la projection du support du capteur et de l'élément sensible sont représentées par des pointillés. Comme on peut le voir, cette vitesse peut varier de $0.01 m/s$ à $0.19 m/s$ en fonction de la zone où l'on se positionne à la surface du capteur.

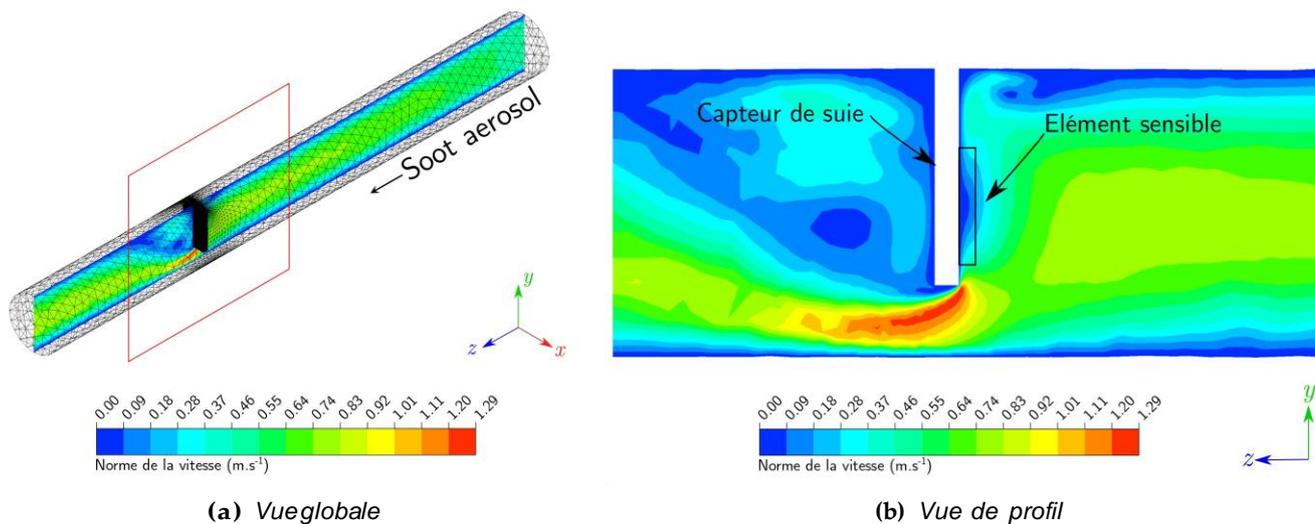


Figure 4.4 – Champ de vitesse (norme) dans la chambre du capteur calculé dans des conditions proches de l'expérience.

La Figure 4.6 représente les composantes de la vitesse en fonction de la hauteur h par rapport au capteur, selon l'axe $-z$ (cf. Figure 4.4). L'origine des hauteurs

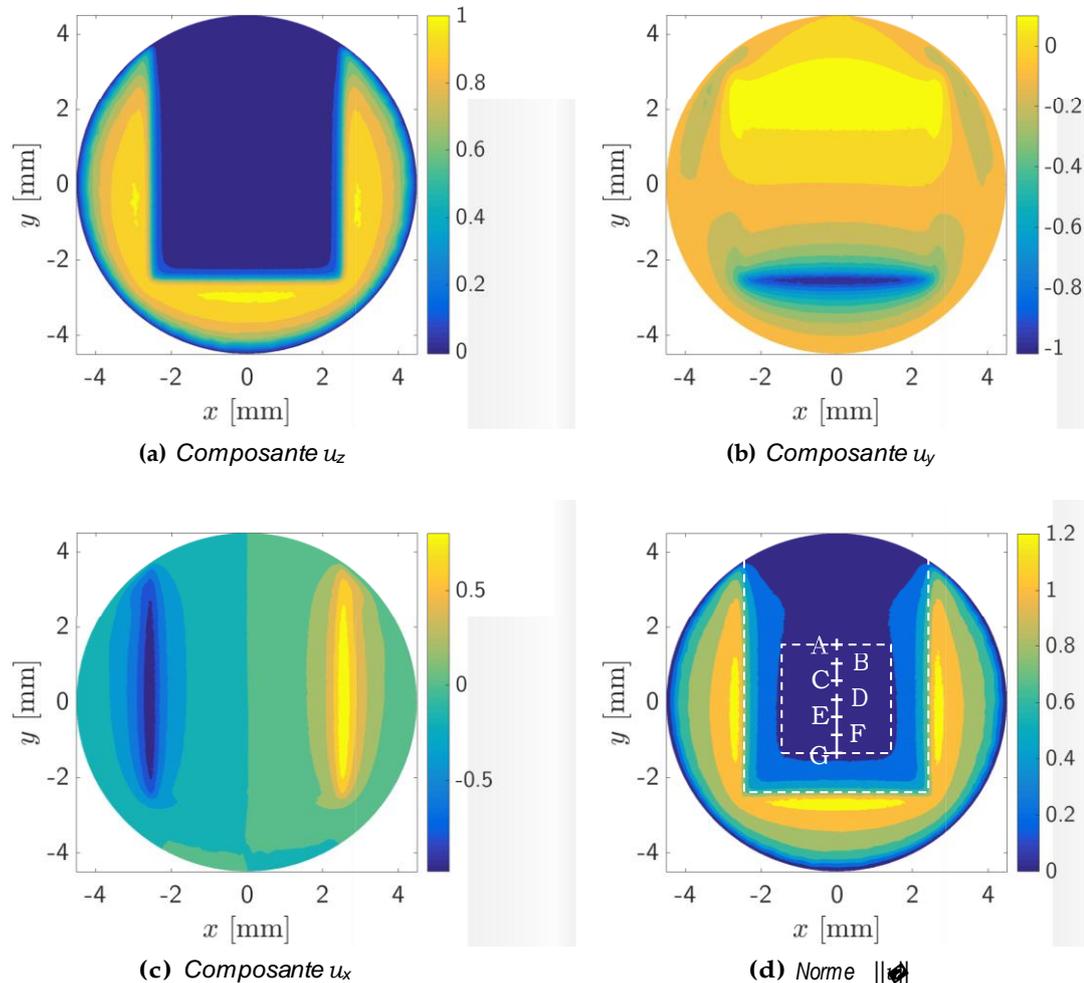


Figure 4.5 – Contours de la vitesse dans le plan situé $100 \mu\text{m}$ au-dessus de la surface du capteur. Les pointillés désignent l'emplacement de l'élément sensible.

représente donc la surface du capteur. Les différentes courbes correspondent à la vitesse le long des axes normaux à la surface du capteur et passant par des points positionnés à équidistance des bords du support. Ils sont régulièrement espacés de $500 \mu\text{m}$ et sont représentés par des croix blanches sur la Figure 4.5 (d), repérées de A à G. Du fait de la condition de non-glissement, la vitesse est nulle à la surface du capteur. Nous ferons par ailleurs l'hypothèse que pour une hauteur suffisamment petite (jusqu'à $150 \mu\text{m}$) la vitesse évolue de façon linéaire par rapport à la hauteur. Cette hypothèse permettra par la suite de modéliser l'écoulement au voisinage du capteur par un écoulement de Couette¹ afin de simplifier les calculs. La même hypothèse est utilisée dans le travail de Teike *et al.* [35].

Au voisinage des électrodes, la modélisation par un écoulement de Couette facilite les calculs, mais il faut remarquer qu'il s'agit d'une approximation forte. En

1. Nom donné à un écoulement entre deux plaques engendré par un cisaillement. L'une des plaques étant mobile, l'autre fixe dans le référentiel du laboratoire. Il s'agit d'une solution analytique simple des équations de Navier-Stokes, conduisant à un profil des vitesses $\mathbf{u}(x, y) = u_x(y) \mathbf{e}_x$ linéaire.

effet, la Figure 4.6 montre que si la composante normale au capteur u_z est inférieure à 0.03 m.s^{-1} si $z < 150 \mu\text{m}$, elle n'est pas pour autant strictement négligeable devant sa composante tangentielle u_y . Néanmoins, cette approximation est d'autant plus vraie que l'on se rapproche de la surface du capteur. Il faudra en tenir compte dans les calculs de trajectoires, et veiller à étudier les particules en deçà de $100 \mu\text{m}$.

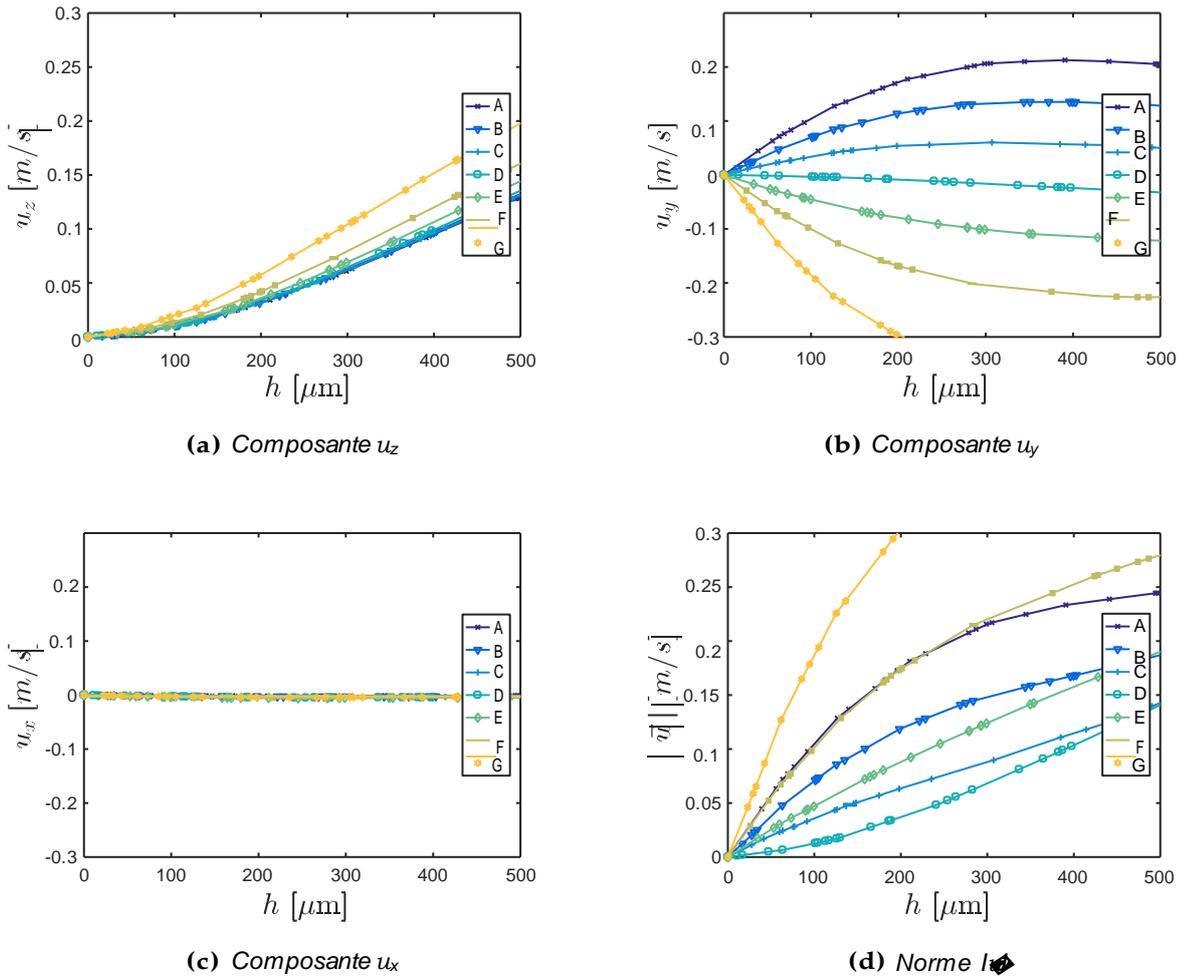


Figure 4.6 – Profils de vitesse en fonction de la hauteur par rapport à l'élément sensible. Chaque courbe représente la vitesse calculée à partir des points représentés par une croix sur la Figure 4.5.

4.3 Champ de vitesses à l'échelle des électrodes

L'écoulement au voisinage des électrodes est modélisé par un écoulement de Couette dont la valeur de la vitesse de cisaillement u_{cis} est donnée par le calcul à l'échelle du capteur : $u_{cis} \in [0.05 ; 0.2] \text{ m.s}^{-1}$. La méthode de Boltzmann sur réseau a permis de calculer le champ de vitesse. L'avantage de cette méthode est sa souplesse : il est facile de modifier la géométrie des électrodes pour y modéliser un

dépôt, et de tenir compte de son influence sur l'écoulement [35]. Le code développé au cours de cette étude exploite directement la méthode de Boltzmann sur réseau, c'est pourquoi nous commencerons par en introduire la théorie et l'implémentation. Notons toutefois qu'une approche analogue basée sur un solveur aux volumes finis aurait pu être envisagée.

4.3.1 Méthode de Boltzmann sur réseau

Equation de Boltzmann

La méthode de Boltzmann sur réseau, abrégée par LBM (*lattice Boltzmann method*) permet, comme les équations de Navier-Stokes, de déterminer les grandeurs macroscopiques que sont la densité, la vitesse et la pression d'un fluide. Toutefois, l'équation résolue par cette méthode numérique est basée sur la distribution des vitesses des molécules dans un fluide, appelées vitesses microscopiques, notée f . L'objectif est de calculer les grandeurs macroscopiques à partir de f . L'équation de Boltzmann, sur laquelle la LBM est basée, décrit le comportement spatial et temporel de f , qui représente la probabilité qu'une molécule, au temps t et à la position \underline{x} , ait une vitesse ξ . C'est une grandeur dite mésoscopique. L'équation de Boltzmann s'écrit :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \xi \cdot \nabla f + \underline{F} \cdot \frac{\nabla}{\nabla_{\xi}} f = \Omega \quad (4.6)$$

Le terme $\underline{F} \cdot \nabla_{\xi} f$ représente l'action d'une force volumique \underline{F} sur la fonction f . L'opérateur différentiel ∇_{ξ} se rapporte à l'espace des vitesses microscopiques. Son expression sera détaillée plus loin, lors de la discrétisation de l'équation de Boltzmann. Le premier terme de la relation (4.6) décrit l'évolution temporelle de f , le deuxième est le terme d'advection et représente son évolution spatiale. Le membre de droite, Ω , est appelé terme de collision. Il décrit la façon dont la fonction de distribution f évolue lors de la collision des molécules entre elles. De nombreux termes de collision sont présents dans la littérature, et permettent chacun d'étudier des cas différents. Le plus répandu et le plus simple est le terme de Bhatnagar-Gross-Krook (BGK) qui s'écrit :

$$\Omega = -\frac{1}{\tau} (f - f^{eq}) \quad (4.7)$$

Où τ représente le temps de relaxation que met une distribution f pour atteindre un équilibre f^{eq} . Le temps de relaxation dépend du fluide, et c'est à travers ce paramètre que le fluide simulé est représenté dans la LBM. En 1916 puis 1917, Sydney Chapman et David Enskog développèrent, indépendamment l'un de l'autre, une théorie selon laquelle il est possible de redémontrer les équations de l'hydrodynamique (Navier-Stokes) en développant l'équation de Boltzmann. Pour respecter les conditions définies dans la théorie de Chapman-Enskog, le temps de relaxation doit respecter la relation :

$$\nu_f = \frac{c^2}{6} (2\tau - \Delta t) \quad (4.8)$$

Où ν_f est la viscosité cinématique du fluide, c est la vitesse de maille définie par $c = \frac{\Delta x}{\Delta t}$, Δt le pas de temps et Δx le paramètre de maille.

Enfin, pour obtenir les grandeurs microscopiques que sont la densité et la quantité de mouvement, il est nécessaire d'intégrer la fonction de distribution et la vitesse microscopique :

$$\rho = \int^r f d\xi \quad (4.9)$$

$$\rho \underline{v} = \int^r f \xi d\xi \quad (4.10)$$

Equation de Boltzmann sur réseau

Pour résoudre l'équation de Boltzmann il faut la discrétiser et c'est la raison pour laquelle on parle de méthode *sur réseau*. La discrétisation sera opérée sur le temps et l'espace. L'espace est discrétisé par un maillage carré, dont chaque maille représente un volume de fluide rempli de molécules dont la vitesse ξ respecte la fonction de distribution f . Enfin, les vitesses ξ sont aussi discrétisées par $\xi = \underline{e}_i c$. C'est à ces directions que font référence les indices i de la fonction de distribution $f_i(\underline{x}, t)$. La version discrète de l'équation (4.6), aussi appelée équation de Boltzmann sur réseau et abrégée par LBE (*lattice Boltzmann equation*) est donnée par :

$$f_i(\underline{x} + \xi \Delta t, t + \Delta t) - f_i(\underline{x}, t) = - \frac{\Delta t}{\tau} (f_i(\underline{x}, t) - f_i^{eq}(\underline{x}, t)) + S_i(\underline{x}, t) \quad (4.11)$$

Où S_i représente le terme source décrivant le terme $F \cdot \underline{v}_i f$ de l'équation (4.6). f_i^{eq} est la fonction de distribution à l'équilibre et s'exprime par :

$$f_i^{eq} = \rho w_i \left[1 + \frac{\underline{e}_i \cdot \underline{u}}{c_s^2} + \frac{(\underline{e}_i \cdot \underline{u})^2}{2c_s^4} - \frac{u^2}{2c_s^2} \right] \quad (4.12)$$

Avec $c_s = \frac{1}{\sqrt{\beta}}$ la « vitesse du son ». Il existe différents schémas de discrétisation : D2Q9, D3Q15, ..., DnQm. Le coefficient n fait référence à la dimension de l'espace (cf. Figure 4.7) tandis que l'indice m évoque le nombre de directions de propagation grâce auxquelles est représentée ξ . Dans l'étude présentée ici, le modèle D2Q9 sera utilisé. Il existe des modèles en deux dimensions qui utilisent une discrétisation plus fine des vitesses microscopiques. Leur utilisation est spécifique à des cas d'écoulements compressibles (étude des ondes de choc par exemple). Nous avons vu plus haut que les vitesses en jeu dans notre système étaient suffisamment faibles pour supposer l'hypothèse d'un écoulement incompressible. Dans ce schéma de discrétisation, les

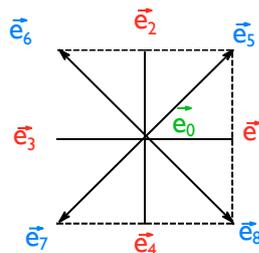


Figure 4.7 – Discrétisation des vitesses dans le schéma D2Q9.

directions des vitesses discrètes sont données par :

$$\underline{e}_i = \begin{cases} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} & \text{si } i = 0 \\ \begin{pmatrix} 0 & 0 & -1 & 0 \\ 1 & -1 & 0 & -1 \end{pmatrix} & \text{si } i = \{1; 2; 3; 4\} \\ \begin{pmatrix} 1 & -1 & -1 & -1 \\ 1 & 1 & -1 & 1 \end{pmatrix} & \text{si } i = \{5; 6; 7; 8\} \end{cases} \quad (4.13)$$

De plus, la fonction f_i est pondérée par le coefficient w_i , qui varie en fonction de la direction i de la vitesse :

$$w_i = \begin{cases} 4/9 & \text{si } i = 0 \\ 1/9 & \text{si } i = \{1; 2; 3; 4\} \\ 1/36 & \text{si } i = \{5; 6; 7; 8\} \end{cases} \quad (4.14)$$

Enfin, le terme de forçage S_i a été exprimé par Kupershtokh *et al.* [121] en fonction de la vitesse d'une particule fluide à l'équilibre après un temps τ , désignée par \underline{u}^{eq} dans la relation :

$$S_i = f_i^{eq}(\rho, \underline{u}^{eq} + \Delta \underline{u}) - f_i^{eq}(\rho, \underline{u}^{eq}) \quad (4.15)$$

Où $\Delta \underline{u} = \frac{F \Delta t}{\rho}$ et F la force volumique agissant sur le fluide. De plus, d'après le principe fondamental de la dynamique, $\underline{u}^{eq} = \underline{u} + \frac{F}{\rho}$.

Le développement du code de calcul a été écrit en Matlab et s'inspire directement de la version disponible sur le site web du projet de recherche Palabos [122]. Seules la géométrie et les conditions aux limites ont été modifiées afin qu'elles soient adaptées à nos calculs.

4.3.2 Domaine de calcul et conditions aux limites

L'objectif est ici de simuler l'écoulement de l'air porteur des nanoparticules au voisinage direct des électrodes. Le domaine de calcul sera présenté dans un premier temps. Pour résoudre l'équation de Boltzmann sur réseau, il faut définir des conditions aux limites. Nous définirons donc les conditions aux limites ainsi que les hypothèses qui en justifient l'usage.

Domaine de calcul Comme l'indique la Figure 4.8, le domaine de calcul ne comprend pas l'ensemble de la surface du capteur mais seulement un motif élémentaire. Il est possible d'obtenir la vitesse à n'importe quel point de la surface par une simple duplication du domaine. Ceci permet de restreindre les calculs à une zone de $60 \mu m$ par $150 \mu m$, ce qui rend le calcul moins coûteux et permet d'utiliser un maillage plus fin. En effet, le paramètre de maille utilisé est de $\Delta x = 500 nm$.

Périodicité La condition de périodicité permet de créer une continuité entre deux parois : la matière qui sort du domaine par l'une rentre par l'autre simultanément.

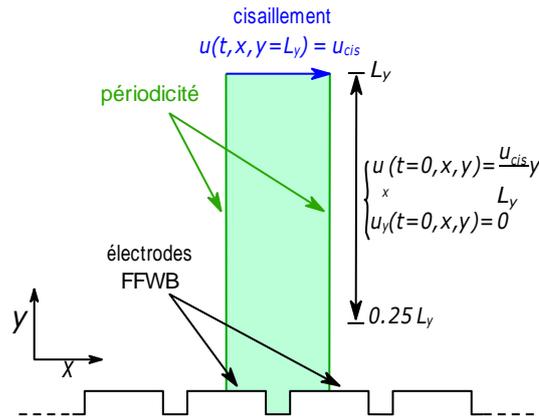


Figure 4.8 – Domaine de calcul (en vert) et conditions aux limites utilisées pour les calculs du champ de vitesse. Les dimensions du domaine sont de $60 \mu m$ par $150 \mu m$.

En pratique, cela se traduit en égalant les fonctions de distributions f_i en jeu à chacune des limites périodiques. En théorie, cela revient à supposer que le domaine est infini. Cela peut se justifier par la comparaison des échelles : une maille a une largeur de $60 \mu m$, ce qui est petit devant la largeur totale de l'élément sensible, qui est de $3 mm$.

Condition de non-glissement La condition de non-glissement, aussi appelée condition de vitesse nulle aux parois, permet de modéliser l'action d'une paroi solide sur le fluide. Elle est désignée, en LBM, par la condition de type *full way bounce back* (FWBB). Il s'agit d'une condition qui impose simplement aux fonctions de distribution de rebondir de façon spéculaire sur les parois. Cette condition est utilisée pour représenter l'influence des électrodes et du substrat sur l'écoulement. Dans la littérature, elle est aussi utilisée pour modéliser le dépôt des particules sur les électrodes [35]. Cela consiste à modifier les conditions aux limites d'une maille et d'y imposer une condition de FWBB, puis de recalculer le champ de vitesse. En pratique, cette méthode est instable numériquement si le calcul est initialisé par la solution au temps $t-1$. Pour éviter cela, une initialisation partielle du domaine de calcul est faite sur 75 % de sa hauteur, afin d'éviter qu'une dendrite n'empiète sur la zone initialisée.

Une solution alternative consiste à appliquer un terme source de force volumique, comme la relation (4.15) le suggère. Cette méthode a été implémentée mais son utilisation n'a pas été validée car des problèmes de stabilité numérique ont été rencontrés lorsque le terme source était trop élevé (au-delà de 20 % de la force de traînée d'une particule).

Vitesse imposée Pour mettre en mouvement l'air dans notre domaine de calcul, un cisaillement $u_{cis} = u(y = L_y)$ a été imposé sur la frontière nord. Latt *et al.* ont examiné plusieurs types de conditions aux limites et les ont classées en deux groupes. Les méthodes qui sont précises pour des écoulements à haut nombre de Reynolds (500 - 10 000) et celles qui conviennent à des nombres de Reynolds plus

faibles (jusqu'à 100) [123].

Pour choisir la méthode adéquate, il faut donc commencer par calculer le nombre de Reynolds dans l'écoulement que nous souhaitons simuler. Pour un écoulement d'air à 180 °C ($\nu_f = 3.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$) dans notre domaine de calcul ($L_y = 150 \mu\text{m}$), et en considérant les vitesses calculées dans le paragraphe 4.2, le nombre de Reynolds est compris entre $Re = 0.3$ et $Re = 1$.

Compte tenu du nombre de Reynolds faible, c'est la méthode de Zou et He [124] qui a été utilisée. Cette méthode compte parmi les plus populaires et figure effectivement comme la méthode la plus pertinente pour des calculs 2D mettant en jeu un nombre de Reynolds faible [123]. Notons que la méthode de Inamuro *et al.* [125] est aussi pertinente dans une telle situation.

4.3.3 Résultats

Une fois le domaine de calcul défini, les conditions aux limites choisies et implémentées dans le code de calcul, le champ de vitesses a été calculé. Le nombre de paramètres d'entrée de ce calcul est relativement faible, et leurs noms et leurs valeurs sont résumés dans la Table 4.1.

Grandeur	Symbole	Valeur	Unité
Hauteur	L_y	150	μm
Largeur	L_x	60	μm
Hauteur des électrodes	h_{elec}	10	μm
Longueur des électrodes	L_{elec}	40	μm
Distance inter-électrode	d_{ie}	20	μm
Paramètre de maille	Δx	0.5	μm
Viscosité cinématique (180 °C)	ν_f	3.2×10^{-5}	m^2/s
Temps de relaxation adimensionné	τ	0.6	—
Vitesse de cisaillement	u_{cis}	0.06	m/s

Table 4.1 – Résumé des paramètres des simulations.

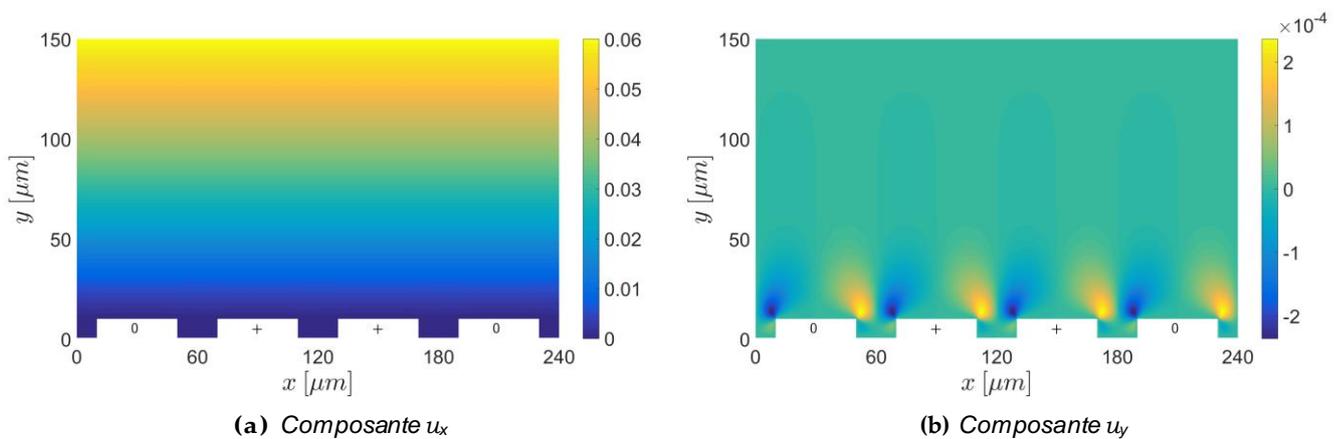


Figure 4.9 – Composantes du champ de vitesse (en m/s) au voisinage des électrodes.

Les Figures 4.9 (a) et (b) représentent respectivement les composantes u_x

et u_y de la vitesse de l'air au voisinage des électrodes. On peut constater que la composante u_x est prédominante sur u_y . Ceci est simplement dû à la nature de l'écoulement (écoulement de Couette, ou écoulement en cisaillement) et à la faible hauteur des électrodes. De ce fait, le modèle représenté ici revient à modéliser la force de traînée des particules comme une force dont la direction est horizontale et dont la norme diminue jusqu'à s'annuler à quelques microns des électrodes. Ce modèle a été validé par une comparaison avec les résultats obtenus par le logiciel commercial Fluent pour la même géométrie, le même fluide et la même vitesse de cisaillement (cf. Annexes E). L'avantage de cette méthode est qu'elle est codée dans l'environnement Matlab, ce qui facilite grandement la gestion du dépôt et la mise à jour du champ de vitesse. De plus, la méthode de Boltzmann sur réseau permet de modifier facilement la nature d'une maille de l'état fluide à l'état solide.

4.4 Champ et forces électriques

L'environnement dans lequel les particules de suie évoluent est soumis à un champ électrique. L'étude bibliographique nous a montré que les particules y étaient sensibles car elles sont porteuses de charges, mais pas uniquement. Aussi, pour modéliser leur mouvement, il est indispensable de calculer le champ électrique généré par des électrodes interdigitées.

4.4.1 Résolution de l'équation de Poisson

Le calcul du champ électrique se fait de façon classique par la résolution de l'équation de Poisson, qui exprime le potentiel électrique V en fonction de la distribution de charge ρ et de la permittivité du vide ε_0 :

$$\Delta V = -\frac{\rho}{\varepsilon_0} \quad (4.16)$$

Une fois le potentiel électrique déterminé, il est possible de retrouver le champ électrique grâce à la relation :

$$\vec{E} = -\nabla V \quad (4.17)$$

En pratique, le calcul du potentiel peut être effectué grâce à une méthode des éléments finis. Il s'agit d'une méthode numérique permettant la résolution d'équations aux dérivées partielles. Le logiciel Finite Element Method Magnetics (FEMM), développé par David Meeke [126] a été utilisé dans ce projet. Il permet de réaliser des calculs d'électrostatique en deux dimensions et par conséquent convient à notre application. Par ailleurs, il a l'avantage de pouvoir s'interfacer très facilement dans l'environnement Matlab, ce qui a grandement simplifié le développement du code de calcul. En effet, les calculs sont pensés pour pouvoir être lancés ou modifiés directement depuis une fonction Matlab, ce qui est très utile dans notre contexte.

4.4.2 Domaine de calcul et conditions aux limites

Le domaine de calcul utilisé pour évaluer le champ électrique au voisinage des électrodes est sensiblement différent de celui utilisé pour le calcul du champ

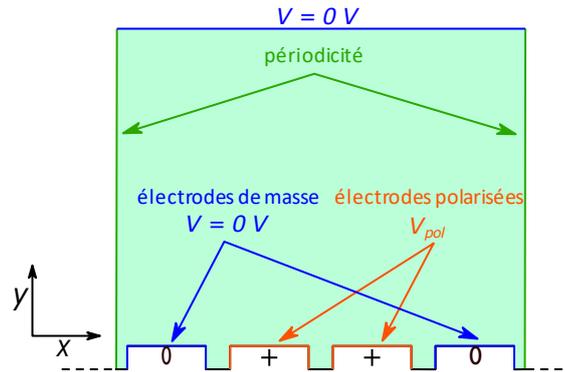


Figure 4.10 – Conditions aux limites et domaine de calcul utilisés pour les calculs d'électrostatique. Les dimensions du domaine sont de $240 \mu\text{m}$ par $1000 \mu\text{m}$.

de vitesse. En effet, le motif élémentaire du domaine de calcul est différent car il faut cette fois tenir compte de la polarisation des électrodes. Le capteur possède un motif qui se caractérise par une alternance de deux électrodes polarisées suivant deux électrodes liées à la masse. La Figure 4.10 représente la maille élémentaire d'un tel motif. Sur cette figure sont aussi représentées les conditions aux limites. La périodicité a été utilisée pour mimer la grande largeur du motif, comme expliqué précédemment. Les électrodes polarisées sont modélisées par une tension imposée tandis que les électrodes reliées à la masse sont représentées par une tension imposée nulle [35].

Les conditions aux limites pour décrire le dépôt de particule de suie sont les mêmes que celles utilisées pour les électrodes. Des éléments carrés, dont les côtés sont affectés par une tension imposée, représentent les particules qui se sont déposées sur les électrodes. Ces carrés sont positionnés à l'emplacement de la collision des particules avec les électrodes, comme cela sera décrit dans la Section 4.5.4 portant sur le modèle de collision. Les éléments carrés constituant les dendrites héritent de la même tension de polarisation que l'électrode à laquelle elles sont rattachées. C'est ainsi que le dépôt des particules est couplé avec le champ électrique [35].

Enfin, l'infini en électrostatique se modélise par une condition de potentiel nul. La paroi supérieure représente cette condition et est positionnée suffisamment loin ($1000 \mu\text{m}$) pour ne pas influencer le champ généré par les électrodes. Ainsi, à l'infini le champ électrique est constant car le potentiel électrique est nul.

4.4.3 Résultats

Dans ce paragraphe, nous nous intéresserons à deux grandeurs : le champ électrique lui-même, noté E , ainsi que le gradient du champ électrique au carré $\bar{\nabla}(E^2)$. Cette seconde grandeur est particulièrement importante dans l'analyse de la diélectrophorèse (DEP) puisque la force diélectrophorétique y est directement proportionnelle (cf. Section 1.6.5).

Notons tout d'abord que le domaine de calcul a une hauteur de $1000 \mu\text{m}$ (cf. Figure 4.10) mais que les composantes du champ E ne sont représentées ici que sur une portion du domaine. Cette portion correspond à la hauteur du domaine de calcul

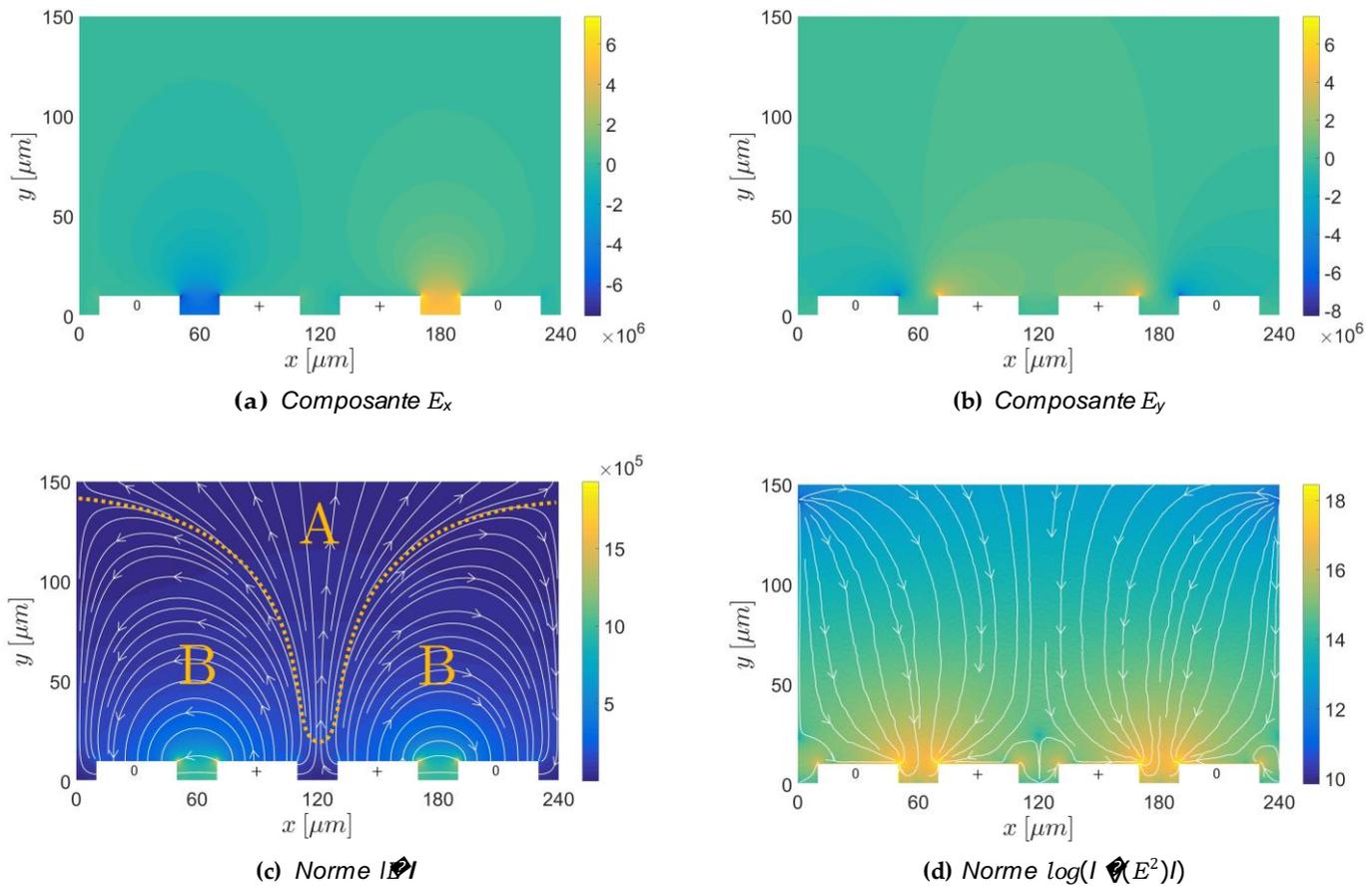


Figure 4.11 – Champ électrique (en V/m) au voisinage des électrodes.

du champ de vitesse (c'est-à-dire $150 \mu m$) et permet une meilleure visualisation. De plus, les calculs présentés ici correspondent au champ électrique généré par des électrodes polarisées sous $20 V$. Dans le reste de l'étude ce paramètre sera amené à évoluer mais l'allure du champ demeurera inchangée. Seules les valeurs évolueront.

Les Figures 4.11 (a) et (b) représentent les composantes du champ E et on peut constater qu'en terme de valeur, elles sont du même ordre de grandeur, contrairement à la vitesse. La Figure 4.11 (c) montre quant à elle la norme du champ électrique au voisinage du capteur. Ce dernier est intense entre les électrodes puis diminue jusqu'à une valeur constante de $3,03 \times 10^4 V/m$ à $200 \mu m$ de la surface des électrodes. De plus, les lignes de champ sont orientées depuis les électrodes positives vers les électrodes liées à la masse. En supposant qu'elles ne sont soumises qu'à la force de Coulomb, les particules chargées à proximité du capteur sont amenées à migrer différemment en fonction de leur signe. Les particules négatives sont attirées inconditionnellement vers les électrodes polarisées. Les particules positives, quant à elles, sont repoussées dans la zone A et attirées par les électrodes reliées à la masse dans la zone B. L'influence de la force de Coulomb est donc symétrique dans la zone B, mais pas dans la zone A, qui est aussi la zone où le champ est le moins intense.

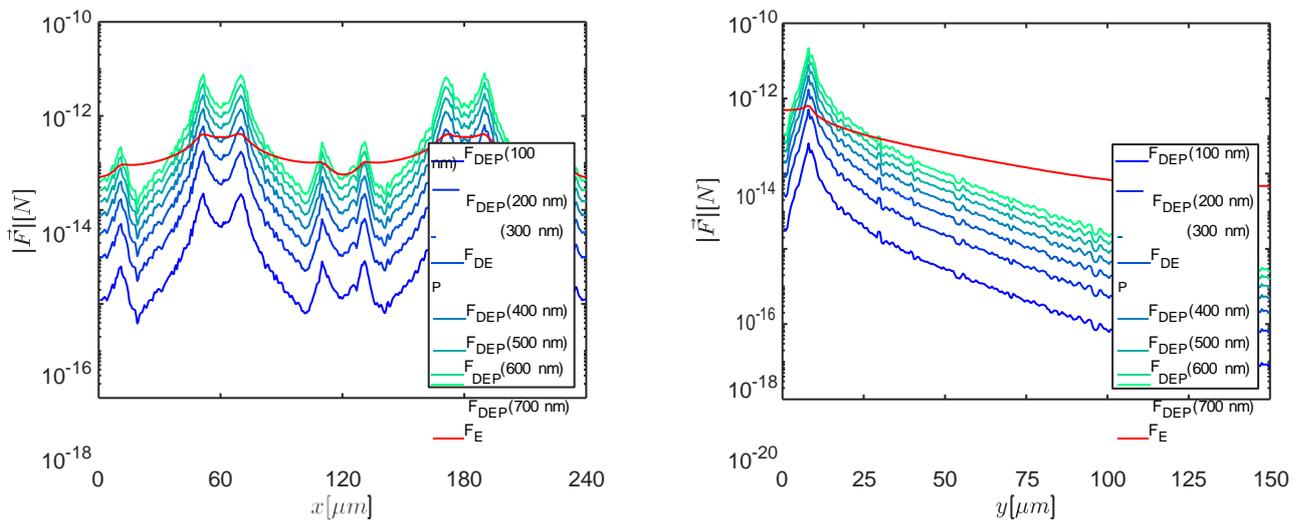
La Figure 4.11 (d) représente le gradient du champ électrique élevé au carré.

Sa norme a été transformée par la fonction logarithme afin d'en améliorer la visualisation. En effet, la grandeur $|\nabla(E^2)|$ est très élevée aux coins des électrodes. Ce calcul permet de mettre en évidence deux propriétés remarquables du champ $\nabla(E^2)$. La première est que la force générée par ce champ est dirigée vers les électrodes, et en particulier vers leurs angles, car c'est là que le champ électrique est le plus élevé. C'est une localisation qui semble, d'après les clichés pris au microscope électronique, être un site de dépôt préférentiel. Ce mécanisme augmente l'effet de pointe mis en évidence par Teike *et al.* [35], qui avait alors été attribué à l'électrophorèse uniquement.

La seconde propriété est que la direction de $\nabla(E^2)$ est indifférenciée par rapport au signe des électrodes. En effet, que les électrodes soient positives ou négatives, la force de diélectrophorèse dirige les particules vers leurs angles indépendamment du signe de leur charge. Ceci permettrait au pont de croître des deux côtés de l'espace inter-électrode afin d'achever la construction d'un pont plus aisément.

4.4.4 Forces électriques

Si ces calculs permettent de mieux comprendre les champs responsables de l'électrophorèse et la diélectrophorèse, ils ne permettent pas d'évaluer les forces en elles-mêmes. Les expressions de la force de Coulomb et de la force diélectrophorétique ont été introduites lors de l'étude bibliographique. Pour les comparer, les uniques prérequis numériques sont le champ électrique, l'expression des forces et les constantes permettant de représenter les particules (*cf.* Section 4.5.1).



(a) Forces calculées sur l'axe horizontal

(b) Forces calculées sur l'axe vertical

Figure 4.12 – Comparaison de la force de Coulomb et de la force de diélectrophorèse agissant sur des particules sphériques de différents diamètres compris entre 100 et 700 nm ($V_{\text{pol}} = 60 \text{ V}$).

La Figure 4.12 représente les forces calculées directement à partir des champs représentés sur les Figures 4.11 (c) et (d). La Figure 4.12 (a) représente les forces calculées le long de l'axe horizontal d'ordonnée $y = 11 \mu\text{m}$ au-dessus des électrodes.

La Figure 4.12 (b), quant à elle, représente les forces calculées le long de l'axe vertical d'abscisse $x = 51.5 \mu\text{m}$. Les axes ont été choisis car ils passent par les valeurs maximales du champ E et ∇E^2 . La force de Coulomb ne varie pas en fonction de la taille et a été représentée pour une particule porteuse d'une unique charge élémentaire e . Elle est ici comparée à la force diélectrophorétique évaluée pour des particules sphériques de diamètres différents. On peut ainsi constater qu'au voisinage du capteur, pour une tension de polarisation $V_{pol} = 60 \text{ V}$, la force de DEP est inférieure de deux ordres de grandeur à la force de Coulomb pour des particules de 100 nm. Néanmoins, pour des particules de 200 nm, les forces ont le même ordre de grandeur, et la diélectrophorèse prend le pas sur la force de Coulomb pour un diamètre supérieur à 300 nm.

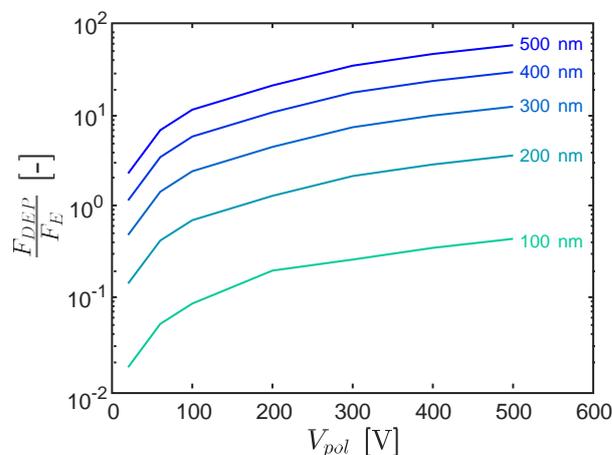


Figure 4.13 – Comparaison de la DEP et de la force de Coulomb pour différentes tensions de polarisation et diamètre de particule. Les forces ont été calculées au point $x = 51.5 \mu\text{m}$ et $y = 11 \mu\text{m}$, là où leur norme est la plus élevée.

La Figure 4.13 permet d'analyser les impacts couplés de la taille des particules et de la tension de polarisation. Le rapport F_{DEP} / F_E représenté ici a été calculé au point où les normes de ces forces sont les plus élevées, au voisinage direct des électrodes. On peut y remarquer que lorsque la tension de polarisation augmente, la force de DEP augmente plus rapidement que la force de Coulomb au voisinage du capteur. Toutefois, la force de Coulomb a un rayon d'action plus important (cf. Figure 4.12 (b)). En théorie, pour une tension suffisamment grande, la diélectrophorèse peut donc être le mécanisme de captation principal des particules de suie à courte portée, et quel que soit leur diamètre.

4.5 Approche lagrangienne

Après avoir défini notre système d'étude, nous nous intéresserons aux mécanismes qui influencent la diffusion de l'aérosol de suie. Dans le Chapitre 1, un inventaire des forces agissant sur les particules de suie a été réalisé (cf. Section 1.6). Chacune des forces agissant sur les particules de suie ont une intensité qui dépend de nombreux paramètres, tels que leur taille, leur masse, leur dimension fractale,

leurs propriétés électriques et thermiques... Le milieu dans lequel elles évoluent les affecte également. Ainsi, la nature du fluide, son champ de vitesse et de température mais aussi le champ électrique ont un impact sur les particules de suie.

L'objectif de ce paragraphe est de présenter les principales forces en jeu, sur la base de notre étude bibliographique. Puis, nous nous pencherons sur les méthodes numériques utilisées dans ce travail pour résoudre l'équation du mouvement. L'ensemble des méthodes permettant de calculer les trajectoires des particules et de coupler leur dépôt avec les autres physiques est désigné par le terme « modèle de captation ».

4.5.1 Modélisation d'une particule de suie

Masse volumique Dans ce travail, les particules de suie sont modélisées par des points. Ils représentent des sphères de densité ρ_p comprise entre 1300 kg/m^3 et 500 kg/m^3 pour des diamètres de mobilité compris entre 50 nm et 500 nm (respectivement). En effet, Yon *et al.* ont montré que les particules de suie générées par un mini-CAST voient leur densité effective diminuer avec l'augmentation de leur diamètre de mobilité électrique [55], du fait de leur caractère fractal. Pour le point de fonctionnement du miniCAST le plus proche de nos conditions expérimentales (cf. Table 4.2), la densité effective d'une particule de diamètre de mobilité de 100 nm est de 800 kg/m^3 . Cette valeur nous servira de référence pour résoudre l'équation du mouvement car elle permet de tenir compte du caractère fractal des particules et de son impact sur leur masse.

Débits	PF1	PF4	Yon <i>et al.</i>			
			(1)	(2)	(3)	(4)
Propane	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6	3
Azote	0	9	0	0	0	12
Air (oxidation)	93	90	90	69	60	72
Densité à 100 nm	-	-	800	1000	1050	500

Table 4.2 – Comparaison des points de fonctionnement utilisées par Yon *et al.* [55]. Les débits sont en l/heure et les densités en kg/m^3 .

Nombres adimensionnés Le nombre de Reynolds est le rapport entre l'inertie de la particule et les forces visqueuses. Il est défini par :

$$Re_p = \frac{u d_p}{\nu_f} \quad (4.18)$$

Où u est la vitesse du fluide. Dans le domaine de calcul tel qu'il est défini pour le calcul du champ de vitesse, le fluide n'atteint pas une vitesse supérieure à 0.2 m/s . Le nombre de Reynolds dans ces conditions varie entre $Re_p = 6.2 \times 10^{-4}$ pour une particule de 100 nm et $Re_p = 6.2 \times 10^{-3}$ pour une particule de $1 \mu\text{m}$. Ainsi, l'écoulement autour de telles particules est dominé par les effets visqueux.

Le nombre de Stokes caractérise le comportement d'une particule dans un écoulement, au voisinage d'un obstacle. Si le nombre de Stokes, noté Stk est tel que $Stk \ll 1$, la particule suit les lignes de courant. A l'inverse, si $Stk \gg 1$, elle s'en

détachera dans les zones où le fluide ralenti brusquement. Il s'exprime par :

$$Stk = \frac{t_0 u(Ly)}{h_{elec}} \quad (4.19)$$

Où t_0 est le temps de relaxation d'une particule, qui correspond au temps caractéristique que met une particule en chute libre (uniquement soumise à sa traînée) pour atteindre sa vitesse limite. Dans le cas où le nombre de Reynolds est tel que $Re \ll 1$, ce temps caractéristique vaut : $t_0 = \frac{\rho_p d^2}{18\eta_f}$. Dans le cas d'une particule de suie au voisinage des électrodes, le nombre de Stokes est compris entre $Stk = 1.8 \times 10^{-4}$ pour une particule de 100 nm et $Stk = 1.8 \times 10^{-2}$ pour une particule de $1\ \mu\text{m}$. Dans notre cas, les suies suivent donc les lignes de courant et ne sont pas déviées par leur propre inertie. Seules des forces extérieures sont à même de les en dévier.

Propriétés diélectriques La polarisabilité des particules de suie est modélisée par le facteur de Clausius-Mossotti (cf. Section 1.6.5). Dans le cas d'un aérosol de suie, on peut remarquer que la permittivité du milieu ϵ_m est proche de la permittivité du vide ϵ_0 : on a que $\epsilon_m = 1.006 \times \epsilon_0$. De plus, le facteur de Clausius-Mossotti pour une particule dans un champ électrique continu est donné par $\frac{\sigma_p - \sigma_m}{\sigma_p + 2\sigma_m}$ et est proche de 1. En effet, pour une particule de suie dans l'air $\sigma_p \gg \sigma_m$. Ce facteur est amené à évoluer avec la fréquence du champ électrique, comme on peut le voir sur la Figure 4.14. Toutefois, sa valeur reste stable jusqu'à 10^{12} Hz quels que soit la conductivité de la particule. En pratique, nous nous placerons toujours dans le cas où $f \ll 10^{12}\text{ Hz}$.

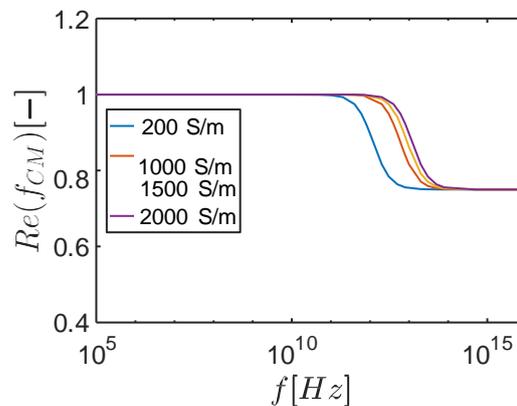


Figure 4.14 – Partie réelle du facteur de Clausius-Mossotti pour différentes conductivités électrique de la particule.

Le calcul du facteur de Clausius-Mossotti repose sur la comparaison entre les conductivités de la particule et du médium, ce qui nous procure une certaine confiance dans sa valeur. Par conséquent, le manque de données concernant la conductivité électrique des suies ne jouent pas un rôle déterminant dans la précision des calculs. Ceci est vrai uniquement si l'écart entre la conductivité du fluide et la conductivité de la particule est significativement différent. Ici, $\sigma_p \gg \sigma_m$ et donc $\frac{\sigma_p - \sigma_m}{\sigma_p + 2\sigma_m} \approx 1$.

4.5.2 Equation du mouvement

Pour étudier le mouvement d'un objet ponctuel, le système d'équations différentielles à résoudre est le principe fondamental de la dynamique, qui s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{dx}{dt} &= v \\ m \frac{dv}{dt} &= P + F_{drag} + F_C + F_{DEP} + F_L \end{aligned} \quad (4.20)$$

Dans ce modèle, les forces en jeu correspondent à celles qui sont étudiées dans la littérature portant sur le capteur de suie résistif [35, 115] à l'exception de l'une d'entre elles : la diélectrophorèse. A première vue, la DEP ne semble pas jouer un rôle important pour des nanoparticules aéroportées, notamment si elle est comparée aux autres forces. Toutefois, nous avons montré que le champ ∇E^2 semble diriger les particules vers les zones préférentielles de dépôt, telles qu'on les observe sur les clichés de microscopie électronique. Cet argument est intéressant car si la force de Coulomb est capable de capter les particules, elle ne tend pas à un dépôt spécifique à la formation de ponts de suie, comme cela sera discuté dans la Section 4.6.3. C'est la raison pour laquelle le terme F_{DEP} figure dans la relation (4.20).

Pour des particules ultrafines ($\approx 100 \text{ nm}$), nous négligerons l'action du poids devant les autres forces en jeu. Le principe fondamental de la dynamique (4.20) s'écrit donc :

$$\begin{aligned} m \underline{a} &= neE(x) \\ &+ x \frac{3\pi\eta_f d_p}{C_c(d_p)} (v(x) - v) \\ &+ \frac{2(16N_A k_B T_f)}{\pi \rho_f d^5 \frac{\rho_p}{\rho_f} C_c(d_p) \Delta t} \\ &\left(\frac{\rho_p}{d_p} \right)^{\frac{2}{3}} \frac{\sigma_p - \sigma_m}{\sigma_p + 2\sigma_m} \nabla E^2(x) \\ &+ 2\pi\epsilon_m \end{aligned} \quad (4.21)$$

Il s'agit donc d'une équation différentielle dans laquelle interviennent toutes les dérivées de la position x de la particule : sa vitesse v et son accélération a . Cette relation illustre l'aspect multiphysique du problème, mêlant aérodynamique ($v(x)$ représentant la vitesse de l'air à la position de la particule) et électrostatique ($E(x)$ représentant le champ électrique à la position de la particule). De plus, on peut voir que la taille des particules joue un rôle important dans le bilan des forces. En effet, le diamètre des particules intervient dans l'expression de chacune des forces à l'exception de la force de Coulomb. Néanmoins, la force de Coulomb est proportionnelle à la charge électrique portée par les particules, qui dépend de leur taille, d'après l'équilibre de Boltzmann. Dans la suite, le facteur de forme x vaudra 1 sauf contre indication. Nous nous intéresserons ici à des particules sphériques de diamètre d_p uniquement car nous ne disposons pas d'expression analytique simple pour la force diélectrophorèse sur des agrégats. L'estimation des forces s'avère par conséquent nécessaire dans le cadre d'une étude portant sur la taille des particules.

4.5.3 Méthodes numériques pour le calcul des trajectoires

D'après la relation (4.20), l'équation différentielle à résoudre pour calculer la trajectoire d'une particule est de la forme :

$$\begin{aligned} \frac{d\underline{v}}{dt}(t) &= f(t, \underline{v}) \\ \underline{v}(t_0) &= \underline{v}_0 \end{aligned} \quad (4.22)$$

Du fait de la force aléatoire qui modélise la diffusion brownienne et de la relative complexité du champ électrique et du champ aérodynamique, la solution analytique de cette équation n'est pas accessible. Il est donc nécessaire d'utiliser une méthode numérique pour sa résolution. Discrétisons le domaine temporel $[t_0; t_0 + T]$ en N sous-intervalles Δt et désignons par t_n ses subdivisions. Simplifions les notations en écrivant $\underline{v}(t_n) = \underline{v}_n$ et $t_n + \Delta t = t_{n+1}$. Le développement en série de Taylor de \underline{v}_{n+1} à l'ordre m s'écrit :

$$\underline{v}_{n+1} = \underline{v}_n + \Delta t \underline{v}_n^{(1)} + \frac{\Delta t^2}{2!} \underline{v}_n^{(2)} + \dots + \frac{\Delta t^m}{m!} \underline{v}_n^{(m)} + o(\Delta t^{m+1}) \quad (4.23)$$

Méthode d'Euler explicite

Cette méthode, nommée d'après le mathématicien Leonhard Euler (1707-1783), est une méthode du premier ordre. Ceci signifie qu'elle consiste à discrétiser l'opérateur de dérivation par son approximation à l'ordre 1 [127]. D'après le développement en série de Taylor à l'ordre 1, le schéma numérique de la méthode d'Euler explicite est :

$$\begin{aligned} \underline{v}_{n+1} &= \underline{v}_n + \Delta t \times f(t_n, \underline{v}_n) \\ \underline{x}_{n+1} &= \underline{x}_n + \Delta t \times \underline{v}_n \end{aligned} \quad (4.24)$$

L'implémentation de la méthode d'Euler explicite est réalisée grâce à l'algorithme 1.

Algorithm 1 Euler explicite

```

1: Initialiser le pas de temps  $h$  et du nombre d'itérations  $T$ 
2: Instancier les conditions initiales  $t \leftarrow t_0$ ,  $\underline{x}(t) \leftarrow \underline{x}_0$  et  $\underline{v}(t) \leftarrow \underline{v}_0$ 
3: while  $t < T$  do
4:    $\underline{v}(t) \leftarrow \underline{v}(t) + \Delta t \times f(t, \underline{v}(t))$ 
5:    $\underline{x}(t) \leftarrow \underline{x}(t) + \Delta t \times \underline{v}(t)$ 
6:   Enregistrer les données
7:    $t \leftarrow t + h$ 
8: end while

```

En pratique, cette méthode est peu utilisée car elle est souvent instable. L'instabilité dépend de plusieurs paramètres comme l'équation en elle-même, ou le pas de temps Δt . Dans notre cas, le pas de temps est estimé grâce au coefficient de diffusion et vaut $\Delta t = \frac{D}{c_{therm}} \frac{8}{\pi}$. Physiquement, il représente le temps moyen entre deux chocs (cf. Section 1.6.7).

Ce pas de temps τ_r vaut 5.11×10^{-8} s pour des particules de 100 nm et 5.82×10^{-7} s pour des particules de 500 nm. Comme la méthode d'Euler repose sur

un développement de Taylor d'ordre 1, sa précision est vraisemblablement proportionnelle à $o(\Delta t^{m+1})$, c'est-à-dire à Δt^2 . Cette précision est à rapporter à la vitesse de la particule, dont l'ordre de grandeur est en moyenne de $10^{-1} m/s$ pour une particule de $100 nm$ soumise à un écoulement de vitesse $u_{cis} = 0.2 m/s$, à une tension de polarisation de $V_{pol} = 100 V$ et injectée à $50 \mu m$ au-dessus des électrodes. Notons qu'il n'est pas possible de déterminer l'erreur de ce calcul avec précision car nous n'en connaissons pas la solution exacte.

En ce qui concerne la stabilité de la méthode, les résultats obtenus sont stables jusqu'à $\Delta t = 2 \times \tau_r$. Des comparaisons de solutions ont été faites pour $100 nm$ et $500 nm$. Enfin, la validation a montré une bonne cohérence avec les mêmes calculs réalisés par le logiciel Fluent (*cf.* Annexe E). Bien qu'elle soit peu recommandée, sa simplicité, sa rapidité et sa robustesse, dans nos conditions, ont fait de la méthode d'Euler une méthode de choix pour les calculs les plus lourds, impliquant un grand nombre de particules.

Algorithme de Verlet à un pas

Cette méthode a été initialement utilisée par le mathématicien et astronome Jean Baptiste Joseph Delambre (1749-1822) dans le cadre de ses travaux en astronomie. Elle a toutefois été redécouverte par Loup Verlet dans les années 1960 pour réaliser des simulations numériques en dynamique moléculaire [128]. L'algorithme de Verlet est spécifiquement dédié à la résolution de l'équation du mouvement, et son champ d'application s'étend des molécules aux astres. L'algorithme 2 repose sur un schéma numérique relativement simple à mettre en oeuvre :

$$\begin{aligned} x_{n+1} &= x_n + \Delta t \times v_n + \frac{\Delta t^2}{2} \times a_n \\ v_{n+1} &= v_n + \frac{\Delta t}{2} \times (a_n + a_{n+1}) \end{aligned} \quad (4.25)$$

Algorithme 2 Algorithme de Verlet

```

1: Initialiser le pas de temps  $h$  et du nombre d'itérations  $T$ 
2: Instancier les conditions initiales  $t \leftarrow t_0$ ,  $x(t_0) \leftarrow x_0$  et  $v(t_0) \leftarrow v_0$ 
3: while  $t < T$  do
4:   Calcul de l'accélération  $a$  (deuxième loi de Newton)
5:    $v(t) \leftarrow v(t) + \Delta t \times a(t) + \frac{h}{2} a$ 
6:   Calcul de l'accélération  $a$  (deuxième loi de Newton)
7:    $x(t) \leftarrow x(t) + \frac{\Delta t}{2} \times (v + v)$ 
8:   Enregistrer les données
9:    $t \leftarrow t + \Delta t$ 
10: end while

```

L'algorithme de Verlet est connu pour produire des résultats de bonne qualité sur des temps physiques longs, et être réversible en temps, par opposition aux méthodes classiques (Euler, Runge-Kutta) [129]. Bien que la méthode d'Euler présente de bons résultats pour des particules sphériques, et que son coût computationnel soit faible, elle ne permet pas de simuler la trajectoire d'agrégats. En effet, en considérant un agrégat dont le facteur de forme χ est supérieur à 1.5, des instabilités numériques sont observées (*cf.* Figure 4.15). Dans le cadre de ce travail de thèse, Ranarivelo *et al.* [130] ont montré, au cours d'un stage de fin d'étude financé par

IFP Energies Nouvelles durant l'été 2018, que l'implémentation de l'intégration de Verlet permet de résoudre la deuxième loi de Newton sans souffrir des instabilités inhérentes à un facteur de forme supérieur à 1.5 (cf. Annexe E).

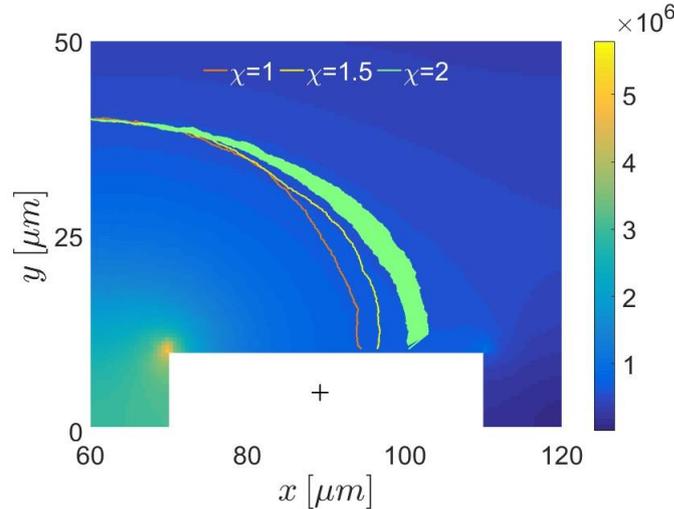


Figure 4.15 – Méthode d'Euler pour différentes valeurs du facteur de forme x [130].

4.5.4 Modèle de dépôt

Le couplage du dépôt des particules avec le calcul du champ électrique et du champ aérodynamique a été montré comme déterminant pour étudier la croissance des dendrites de suie à la surface d'un capteur résistif [35]. Par conséquent, le modèle de dépôt doit prendre en charge :

- la détection de collision entre les particules et les électrodes, et les dendrites de particules qui s'y sont déjà déposées ;
- la mise à jour des champs électrique et aérodynamique, dont le calcul a déjà été présenté plus haut (cf. Section 4.3 et 4.4) ;
- le modèle de sous-maille

Le dépôt des particules sur les électrodes est modélisé par un changement des conditions aux limites pour les mailles où les particules se sont déposées. Ce changement de conditions aux limites concerne le calcul aérodynamique, le calcul électrostatique et le maillage de collision. Le champ aérodynamique et le champ électrique sont mis à jour pour tenir compte du dépôt. Un maillage spécifique pour la collision a été implémenté [130]. A chaque pas de temps, et pour chaque particule de l'aérosol, un test de collision est opéré pour chacune des mailles du maillage de collision (cf. Algorithme 3). Le test de collision consiste en une comparaison systématique de la position des particules avec la position des mailles de collision. Si une particule heurte une maille de collision, compte tenu de son diamètre, le test est défini comme positif. Dans ce cas, le compteur de la maille en question est incrémenté. Lorsqu'il atteint sa valeur maximale, notée K_{dep} par Teike *et al.*, le maillage de collision est étendu pour tenir compte de ce nouveau dépôt (cf. Figure 4.16). Ce modèle ne tient pas compte de la remise en suspension des particules après heurt avec une surface.

Algorithm 3 Modèle de dépôt

```

1: A un instant  $t_n$  donné
2: for all particule de l'aérosol  $p$  do
3:   for all maille de dépôt  $d$  do
4:     Test de collision
5:     if Test positif then
6:        $compteur(d) \leftarrow compteur(d) + 1$ 
7:       if  $compteur(d) = K_{dep}$  then
8:         Calculer le nouveau champ aérodynamique ⚡⚡
9:         Calculer le nouveau champ électrique ⚡⚡
10:        Eten dre le maillage de collision
11:      end if
12:    end if
13:  end for
14: end for

```

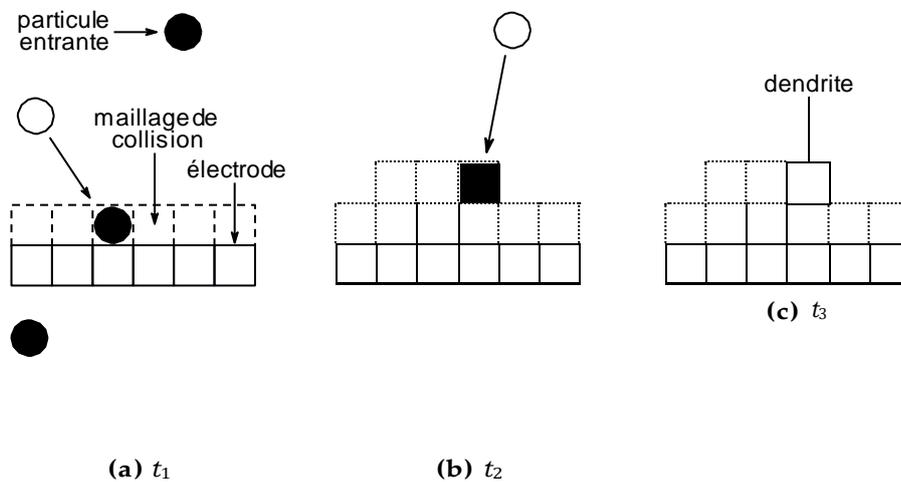


Figure 4.16 – Illustration du maillage de collision pour $K_{dep} = 1$.

En pratique, les mailles de collisions, dont la dimension est la même que les mailles utilisées pour le calcul du champ de vitesse, sont souvent plus grandes que la dimension des particules elles-mêmes. En effet, la valeur par défaut du paramètre de maille est 500 nm . La valeur de K_{dep} est donc généralement supérieure à un, d'où l'intérêt d'un compteur par maille. Par ailleurs, Teike *et al.* montrent que ce paramètre affecte la résolution des dendrites et le temps de calcul. En effet, une valeur faible de K_{dep} entraîne des calculs de couplage plus fréquents. Pour $K_{dep} = 1$ les structures présentent davantage de ramifications que pour $K_{dep} = 10$ mais l'allure générale de la dendrite reste inchangée. La valeur standard utilisée dans leur étude est $K_{dep} = 5$. Dans nos calculs, la taille des particules sera aussi représentée par ce paramètre. Nous ferons l'hypothèse que lors de leur captation, les particules s'orientent de façon à maximiser leur longueur (*cf.* Section 4.9). Par exemple, seulement deux particules de 500 nm seront nécessaires pour « remplir » une maille de $1 \mu\text{m}$.

4.5.5 Limites du modèle de captation

Pour conclure au sujet du modèle de captation présenté ici, il permet d'étudier le comportement des particules de suie ayant une taille inférieure à $1 \mu\text{m}$, limite au-delà de laquelle la pesanteur a une action non négligeable. Tout comme Teike *et al.*, dans cette étude, ce sont des particules sphériques qui ont été étudiées et les résultats

de ces calculs seront présentés dans les Sections 4.6 et 4.7. Il est toutefois possible d'apporter un degré de précision supplémentaire en considérant des particules non-sphériques. Cela peut se traduire par l'ajout du facteur de forme χ dans l'expression de la traînée, et par l'orientation de la particules sous l'effet du champ électrique, ce qui sera aussi abordé plus tard.

Enfin, nous abordons le problème en deux dimensions. Si cette approche est cohérente pour le calcul des trajectoires, elle est toutefois discutable pour le modèle de dépôt. En effet, la modification du maillage en deux dimensions se traduit par l'ajout de structures dendritiques bidimensionnelles alors qu'elles sont en réalité tridimensionnelles. L'utilisation de cette méthode se justifie car le modèle est destiné à mieux comprendre les phénomènes en jeu en estimant l'importance relative, et non à les prédire.

4.6 Analyse cinématique

Dans cette section, nous allons exploiter le calcul de trajectoire présenté plus haut (cf. Section 4.5). Il n'est pas ici question de construction de dendrites. Dans les calculs présentés dans cette section, le champ électrique et le champ aérodynamique restent inchangés du début à la fin des calculs. Plusieurs paramètres sont étudiés ici pour mieux comprendre comment les particules se déplacent au voisinage des électrodes, et en particulier pour comprendre le rôle de la taille des particules.

4.6.1 Etude des trajectoires

Impact de la diffusion

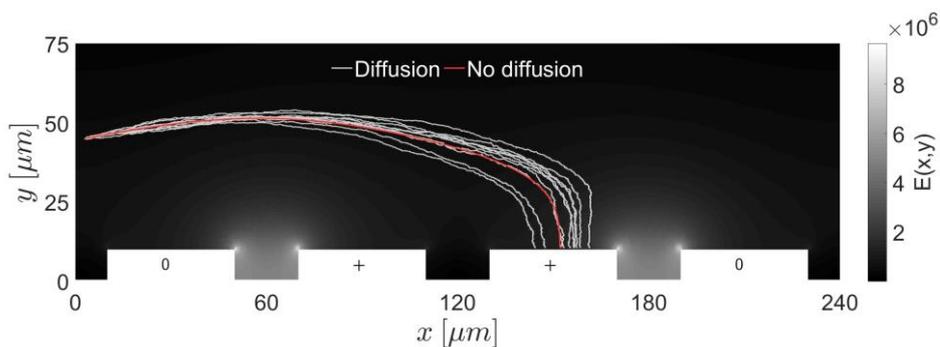


Figure 4.17 – Impact de la diffusion ($d_p = 100 \text{ nm}$, $V_{pol} = 100 \text{ V}$, $u_{cis} = 0.2 \text{ m.s}^{-1}$).

La diffusion brownienne a un impact non négligeable sur la trajectoire des particules. Il ne s'agit pas à proprement parler d'un paramètre physique, mais plutôt du modèle lui-même. La Figure 4.17 représente dix trajectoires de particules de 100 nm afin d'en illustrer la largeur du faisceau. La tension de polarisation est de 100 V et la vitesse de cisaillement est de 0.2 m.s^{-1} . La courbe rouge représente la trajectoire qu'auraient eu ces dix particules si la diffusion était négligée dans ce modèle. Pour certaines études, la diffusion brownienne sera annulée afin de mieux

comprendre l'impact de certains paramètres qui peuvent être masqué par le caractère aléatoire des trajectoires. L'impact de la diffusion décroît avec la taille des particules.

Impact de la charge électrique

D'après l'équilibre de Boltzmann, le nombre de charges électriques portées par les particules peut varier. Pour des particules de 100 nm , la plupart sont neutres électriquement (environ 60 %). Le nombre de charges élémentaires varie de 1 à 3 (en valeur absolue), bien qu'il soit rare d'observer des particules portant plus de deux charges.

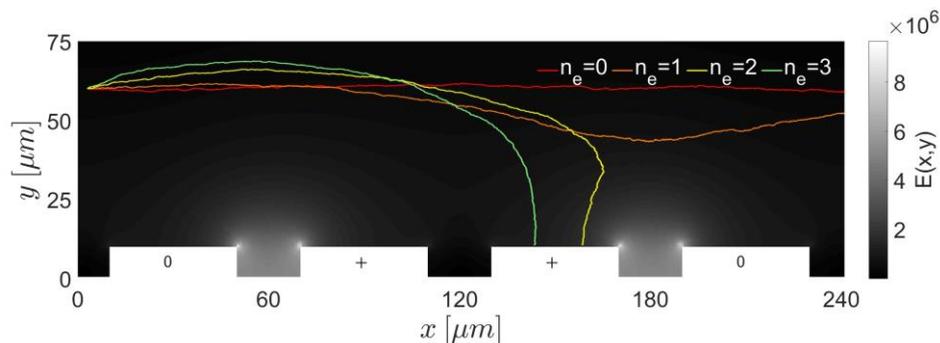


Figure 4.18 – Impact de la charge électrique ($d_p = 100\text{ nm}$, $V_{pol} = 100\text{ V}$, $u_{cis} = 0.2\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$).

La Figure 4.18 représente l'influence de ce nombre de charge sur la trajectoire des particules pour une tension de 100 V et une vitesse de cisaillement de $0.2\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. La particule neutre n'est pas influencée par le champ électrique. En effet, la force de Coulomb est annulée par sa neutralité. De plus, elle est trop petite et trop éloignée des électrodes pour être à la portée de la force de diélectrophorèse. Par ailleurs, plus la charge augmente, plus les particules se déposent rapidement. Elles sont également d'autant plus repoussées par l'électrode de masse car leur charge est négative.

Impact du facteur de forme

A l'exception de la Figure 4.19, les calculs présentés dans cette étude utilisent le modèle des particules sphériques. En effet, toutes les forces implémentées dans le suivi lagrangien n'ont pas d'expression analytique pour des particules non-sphériques : c'est le cas de la force de diélectrophorèse. Par soucis d'homogénéité, nous avons donc choisi de nous restreindre à cette approximation. Toutefois, une extension du modèle est proposée dans la suite de cet exposé (cf. Section 4.8).

Comme on peut le voir sur la Figure 4.19 (b), les calculs ont été réalisés en supprimant les effets liés à la diffusion afin de mieux observer l'impact du facteur de forme. De plus, ces calculs ont été réalisés avec l'algorithme de Verlet car comme nous l'avons vu, la méthode d'Euler est instable pour des facteurs de forme trop élevés. L'influence de x sur la trajectoire est remarquable et tend à augmenter la force de traînée des particules de suie, si bien qu'elles ont davantage tendance à se déposer aux extrémités des électrodes. Or, comme nous l'avons vu sur les images

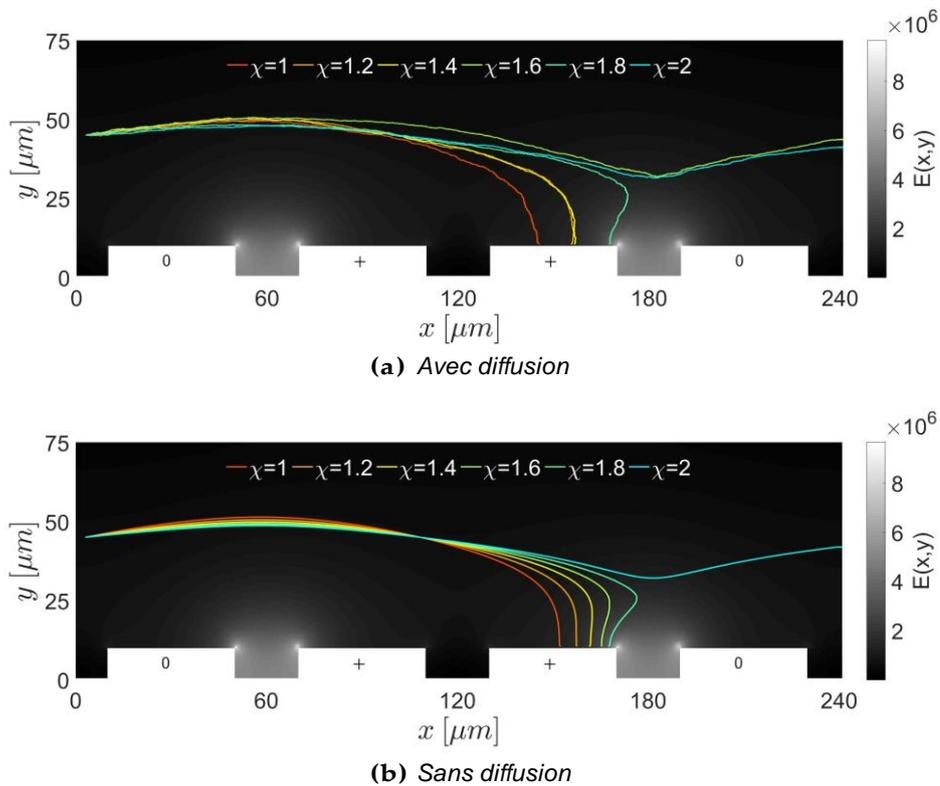


Figure 4.19 – Impact du facteur de forme ($d_p = 100 \text{ nm}$, $V_{pol} = 100 \text{ V}$, $u_{cis} = 0.2 \text{ m.s}^{-1}$).

MEB, ce sont ces sites-là qui semblent être les plus propices à la formation des ponts de suie.

Impact de la taille

Captation par électrophorèse Sur la Figure 4.20, deux séries de trajectoires sont représentées, pour deux diamètres de mobilité différents : 60 et 100 nm. Ces diamètres correspondent en effet à la gamme de taille étudiée expérimentalement. Les particules représentées sur ce diagramme portent une unique charge électrique élémentaire e négative.

La hauteur d'injection constitue la condition initiale sur la position des particules. Elle a une forte influence sur la solution car elle détermine l'équilibre initial des forces. De façon générale, plus les particules sont injectées proches des électrodes, plus leur captation sera rapide, c'est ce qui est mis en évidence sur la Figure 4.20. En effet, en se rapprochant des électrodes, le champ de vitesse, qui exerce une force horizontale, décroît en intensité. A l'inverse, le champ électrique est de plus en plus intense à mesure que l'on s'en rapproche des électrodes.

Les particules de 60 nm sont rapidement captées, et leur trajectoire est largement influencée par le champ électrique (cf. Figure 4.11 (c)). Dans ce cas, la force de Coulomb est prédominante sur les effets aérodynamiques. Les particules de 100 nm sont également influencées par le champ électrique mais leur diamètre supérieur leur

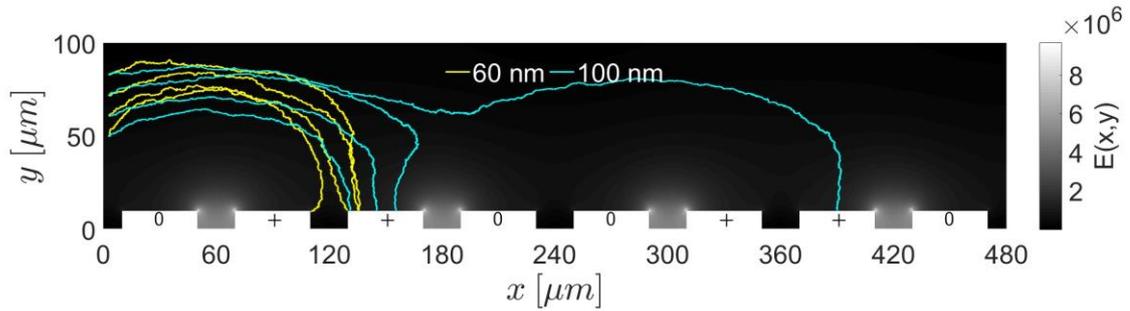
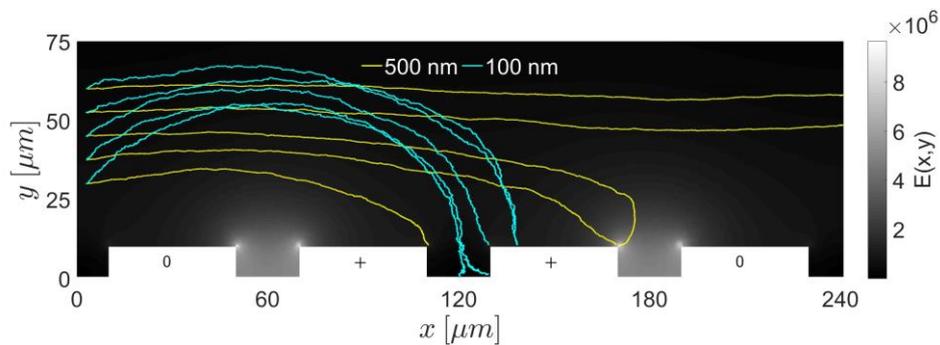
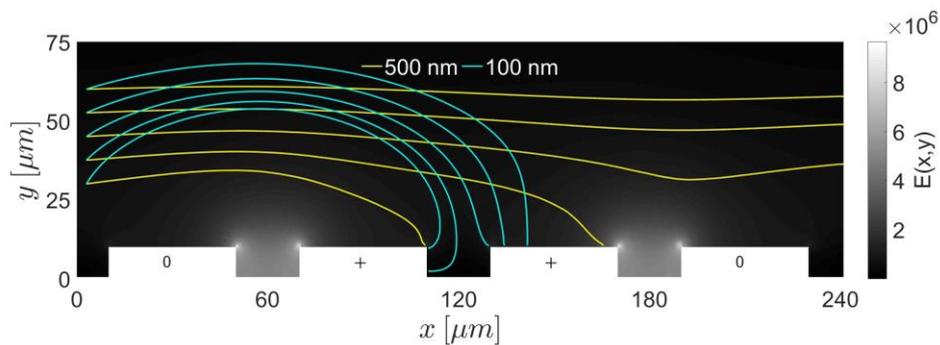


Figure 4.20 – Impact de la taille ($V_{pol} = 60 \text{ V}$, $u_{cis} = 0.06 \text{ m.s}^{-1}$).

confère une sensibilité accrue à la vitesse du fluide. En effet, la force de traînée est proportionnelle au diamètre des particules. Elles sont donc entraînées plus loin par la vitesse du fluide, positive dans le sens des x positifs. Si les trois particules injectées au voisinage des électrodes sont captées sur la deuxième électrode polarisée, celle qui a été injectée plus haut poursuit sa course. Lors de son passage au-dessus des électrodes de masse, le champ électrique la repousse. Ce n'est que sur le deuxième motif d'électrodes que la particule sera captée. Notons ici que la géométrie a été dupliquée pour améliorer la lisibilité des courbes.



(a) Avec diffusion



(b) Sans diffusion

Figure 4.21 – Impact de la taille ($V_{pol} = 100 \text{ V}$, $u_{cis} = 0.06 \text{ m.s}^{-1}$).

Captation par diélectrophorèse Cette fois, la trajectoire d'une particule de 500 nm a été comparée à celle d'une particule de 100 nm. A cette échelle de taille, la particule réagit différemment au champ électrique et la diélectrophorèse entre en jeu. La tension de polarisation a été réhaussée par rapport aux calculs de la Figure 4.20 pour faciliter l'observation de ce phénomène. Une autre option aurait été de diminuer la distance inter-électrode. On peut voir sur la Figure 4.21 que la diélectrophorèse a pour effet de précipiter la particule de 500 nm sur les angles des électrodes, qui est une position préférentielle pour construire des ponts.

Ces premiers calculs mettent en évidence les différentes trajectoires que peuvent adopter des particules selon leur hauteur d'injection et leur taille. Ce premier résultat permet de supposer raisonnablement que la cinématique des particules peut être un des facteurs responsables de la différence de temps de percolation mis en évidence lors de l'étude expérimentale. En effet, elles ne se déposent pas dans les mêmes zones et peuvent donner lieu à des phénoménologies de construction de dendrite différentes. Pour quantifier ce dépôt, il est d'abord nécessaire d'étudier leur trajectoire, et en particulier l'influence des conditions initiales.

Impact de la fréquence du champ électrique

Nous nous sommes également penchés sur l'impact d'une polarisation alternative du capteur. Pour simuler ce type de polarisation, l'expression analytique des forces électriques ont été modifiées directement. La force de Coulomb est donnée par :

$$F_E = n_e e E(x, t) = n_e e E_0(x) \cos(\omega t) \quad (4.26)$$

Où $\omega = 2\pi f$ est la pulsation du champ électrique et $E_0(x)$ est l'intensité du champ électrique à la position de la particule. La force de diélectrophorèse est quant à elle modélisée par la relation :

$$F_{DEP} = 2\pi\epsilon_m \left(\frac{d_p}{2} \right)^3 \frac{\sigma_p - \sigma_m}{\sigma_p + 2\sigma_m} \nabla E_0(x) \cos^2(\omega t) \quad (4.27)$$

La Figure 4.22 représente les trajectoires de particules portant une charge élémentaire e dans un champ électrique tel que $E(x, t) = E_0(x) \cos(\omega t)$. Les particules les plus fines sont peu sensibles à la diélectrophorèse, c'est donc la force de Coulomb qui gouverne leur comportement : elles sont alternativement attirées puis repoussées à la fréquence de la tension de polarisation. Ainsi, plus la fréquence est faible, plus les oscillations sont intenses. En revanche, les particules les plus grosses ($d_p > 300$ nm) sont aussi sensibles à la diélectrophorèse, qui est une force attractrice quelque soit le signe du champ ou des particules. Les particules les plus fines peuvent donc être discriminées et les plus massives captées en imposant une fréquence suffisamment haute. On peut par ailleurs remarquer que si la diélectrophorèse est suffisamment importante ($d_p > 500$ nm), elle est suffisante pour capter une particule neutre, voire porteuse d'une charge de même signe que celle de l'électrode.

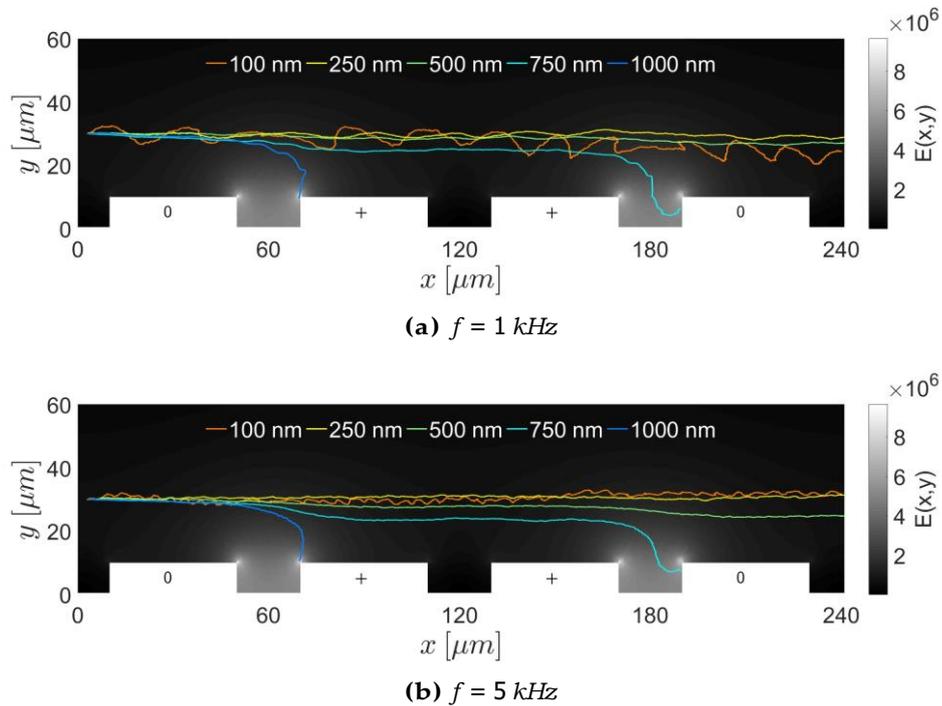


Figure 4.22 – Impact de la fréquence et de la taille ($V_{pol} = 100 \text{ V}$, $u_{cis} = 0.2 \text{ m.s}^{-1}$).

4.6.2 Hauteur de captation

La hauteur de captation, notée h_{capt} , est définie comme étant la hauteur maximale d'injection d'une particule telle qu'elle se dépose sur le premier motif d'électrodes. Le schéma de la Figure 4.23 explique ce concept. La hauteur de captation n'est influencée que par les forces agissant sur la particule et permet donc d'évaluer l'équilibre entre les forces aérodynamiques et les forces électriques. Pour calculer la

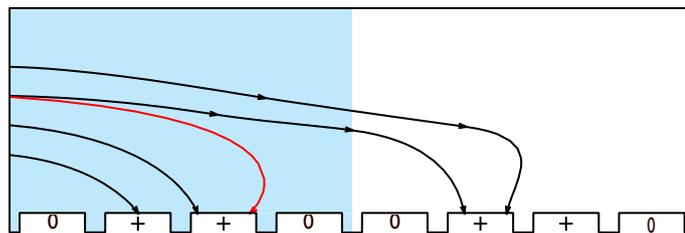


Figure 4.23 – Schéma illustrant la hauteur de captation.

hauteur de captation, dix particules sont injectées à une hauteur donnée en tenant compte de la diffusion. La hauteur d'injection est incremented tant que le nombre de particules se déposant sur le premier motif est plus grand que neuf. La Figure 4.24 représente la hauteur de captation en fonction de deux paramètres : la vitesse de cisaillement u_{cis} et la tension de polarisation V_{pol} . Ces grandeurs représentent respectivement les forces aérodynamiques et les forces électriques.

Comme on peut le voir sur la Figure 4.24, la hauteur de captation augmente avec la tension de polarisation. Cela s'explique par la prédominance de la force de Coulomb sur une distance qui croît proportionnellement à l'intensité du champ électrique. Ici, la force diélectrophorétique a un impact négligeable sur la hauteur de captation. En effet, nous avons vu que la force de Coulomb avait un impact à champ éloigné et proche, par opposition avec la force de diélectrophorèse, qui a principalement une action à champ proche. Toutefois, cela dépend de la taille des particules et de l'intensité du champ électrique, mais qui ne sont pas celles de nos conditions expérimentales.

De plus, la vitesse de cisaillement a un effet négatif sur la hauteur de captation. Plus elle augmente, plus la hauteur de captation diminue. En effet, l'air en mouvement a une composante horizontale prédominante, ce qui s'oppose à la captation. Les particules sont donc entraînées sur les motifs suivants et le temps nécessaire à leur dépôt augmente. La hauteur maximale de captation est donc observée pour des vitesses de cisaillement faibles et des tensions de polarisation importante.

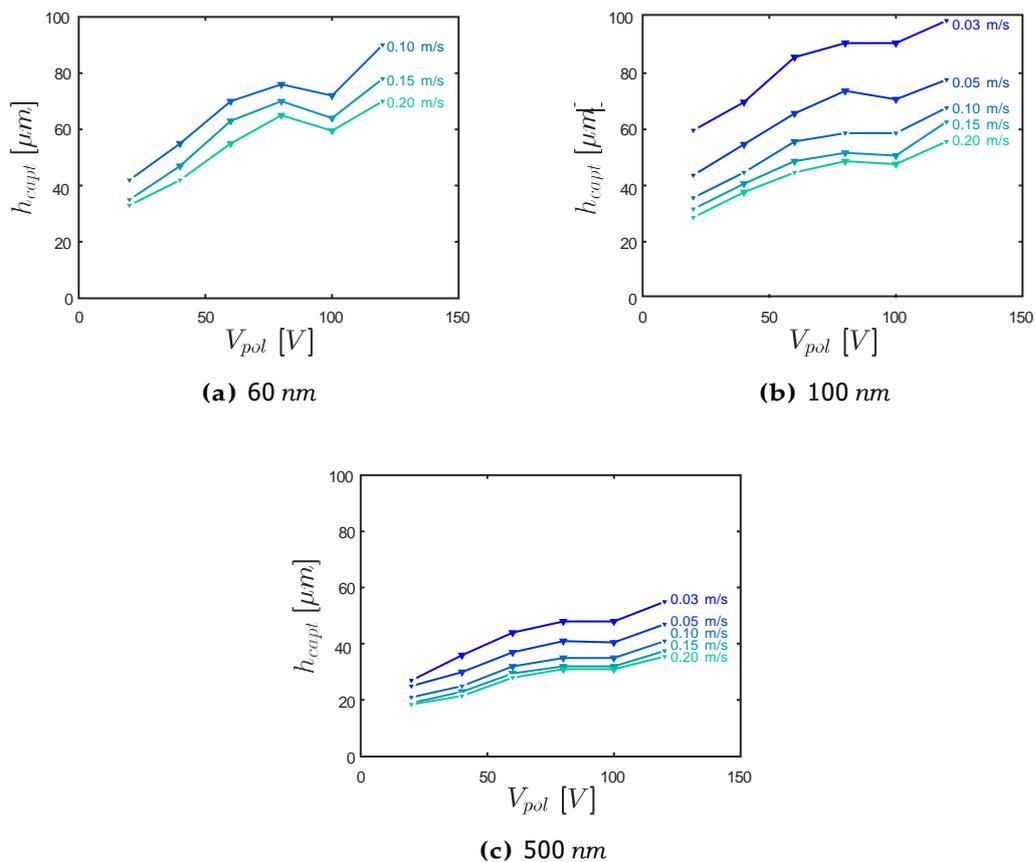


Figure 4.24 – Hauteur de captation pour différentes valeurs de V_{pol} et u_{cis} , et différents diamètres.

Enfin, la taille des particules joue un rôle important dans la hauteur de captation. Comme cela a été observé grâce aux calculs de trajectoires (cf. Figure 4.20), plus le diamètre diminue, plus la mobilité électrique augmente. Il n'est donc pas étonnant

d'observer ici que plus le diamètre augmente, moins la hauteur de captation est élevée. La hauteur de captation n'est toutefois pas synonyme de sensibilité du capteur. h_{capt} augmente lorsque le diamètre des particules diminue. Une hypothèse pourrait être de lier une hauteur de captation importante à une réponse rapide du capteur, puisque cela signifie que davantage de particules sont collectées. Or, c'est l'inverse qui est observé expérimentalement. Pour expliquer cette tendance, nous allons nous intéresser aux zones où les particules finissent leurs courses et se déposent.

La hauteur de captation permet d'injecter des particules se déposant uniquement sur le premier motif d'électrodes. Il s'agit d'une condition nécessaire pour une étude du dépôt. En effet, si parmi les particules injectées, seule une portion se dépose sur le capteur et sont comptabilisées, cela est susceptible d'amener un biais dans le calcul de la proportion de particules déposées par rapport aux particules injectées.

4.6.3 Histogramme de dépôt

Le calcul de la hauteur de captation h_{capt} sert de paramètre d'entrée pour le calcul du dépôt : $n_{tot} = 500$ particules sont injectées à l'entrée du domaine, entre la hauteur $h_{min} = 15 \mu m$ (définie de façon arbitraire) et la hauteur h_{capt} . Les positions sont initialisées de façon à ce que les particules soient espacées régulièrement à l'entrée du domaine de calcul. Les trajectoires sont calculées pour une tension de polarisation de $V_{pol} = +60 V$ et une vitesse de cisaillement de $u_{cis} = 0.2 m/s$. Les particules sont supposées sphériques et porteuses d'une unique charge élémentaire e .

Nous nous intéressons au nombre de particules déposées en fonction des abscisses x_i des mailles sur la surface des électrodes, avec $i = 1; \dots; N$. Cette fonction sera notée $n(x_i)$. La probabilité qu'une particule se dépose sur la maille d'abscisse x_i est donc donnée par (cf. Figure 4.26) :

$$P(x = x_i) = \frac{n(x_i)}{n_{tot}} \quad (4.28)$$

De plus, la probabilité qu'une particule se dépose au-delà d'une abscisse x_i sera donnée par (cf. Figure 4.25) :

$$P(x > x_i) = \sum_{j=N}^i \frac{n(x_j)}{n_{tot}} \quad (4.29)$$

La taille des particules joue un rôle remarquable dans le dépôt, en particulier dans la gamme de diamètres étudiée expérimentalement (60-80 nm). Tout d'abord, remarquons que, expérimentalement, les zones où la majorité des ponts sont observés correspondent aux inter-électrodes qui délimitent l'électrode polarisée de l'électrode de masse. D'ailleurs, seuls les ponts formés entre ces électrodes sont susceptibles d'être détectés car le courant ne circulerait pas dans une structure liant deux électrodes de masse ou deux électrodes polarisées. Par conséquent, supposons que les particules utiles à la formation des ponts sont celles qui se déposent à proximité des inter-électrodes polarisé-masse. Elles constituent des zones de construction préférentielles. Elles sont représentées sur la Figure 4.25 et se situent à la droite des lignes pointillées.

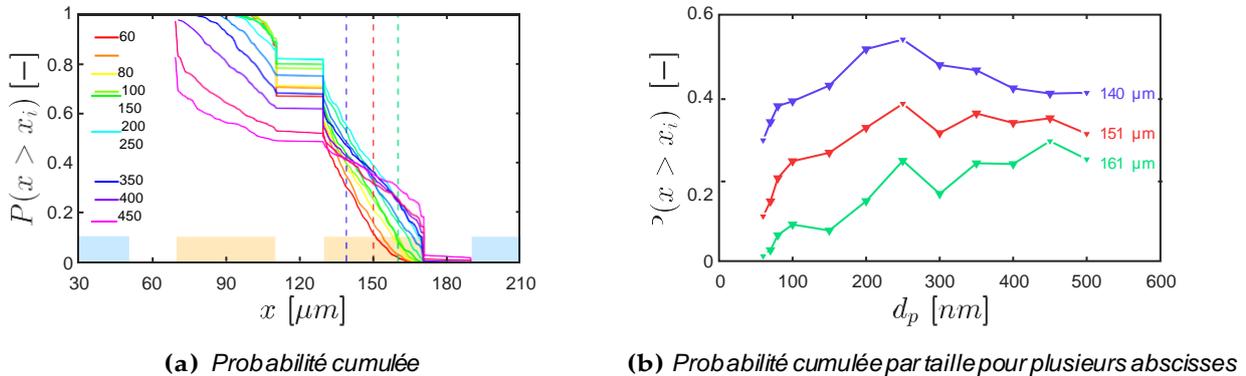


Figure 4.25 – Probabilité cumulée du dépôt.

Les Figures 4.25 et 4.26 nous indiquent que le diamètre a une influence sur la proportion de particules qui se déposent dans ces zones : plus le diamètre augmente, plus les histogrammes se décalent dans leur direction. Les particules de suie les plus fines ont tendance, sous l'effet du champ électrique, à se déposer principalement au centre des électrodes, du fait de leur plus grande mobilité électrique. Le diamètre augmentant, elles sont davantage sujettes à la force aérodynamique, qui les entraîne plus loin avant leur dépôt. Pour les particules dont la taille est comprise entre 60 nm et 250 nm, on peut observer sur la Figure 4.25 que la proportion de particules qui se déposent au-delà de l'extrémité droite des électrodes polarisées augmente rapidement.

Néanmoins, les observations expérimentales montrent que des ponts sont formés sur la zone préférentielle de droite, mais également sur celle de gauche. Une haute densité de ponts est observée sur une inter-électrode sur deux. Or, le modèle n'indique une formation de ponts que sur une inter-électrode sur quatre. Toutefois, ce modèle ne prend pas en compte le couplage du champ électrique avec le dépôt. Il est donc possible que, au cours du temps, des dendrites verticales se forment, modifiant le dépôt des particules. Il faut donc probablement voir ces histogrammes comme un état initial du dépôt. Le couplage avec le champ électrique est pris en compte dans l'étude de la croissance des dendrites, dans la Section 4.7.

Quant aux particules supérieure à 250 nm, le dépôt se fait majoritairement aux angles des électrodes. En effet, dans cette gamme de taille, les particules sont davantage soumises à la diélectrophorèse que les particules de 100 nm. Ce mécanisme précipite les particules dans les zones de fort gradient, quelle que soit la polarisation de l'électrode. C'est la raison pour laquelle certaines particules atteignent l'électrode de masse, alors que la force de Coulomb est répulsive en raison du signe de la charge électrique. Ainsi, au-delà du seuil de 250 nm, les particules se déposent plus équitablement à gauche et à droite des électrodes polarisées.

La taille a donc un rôle sur la zone où les particules se déposent, et, indirectement, sur leur capacité à contribuer à la formation de ponts ou de dendrites. On peut donc émettre l'hypothèse que ce phénomène contribue à une formation plus rapide des ponts constitués des particules les plus grandes, conformément aux observations expérimentales.

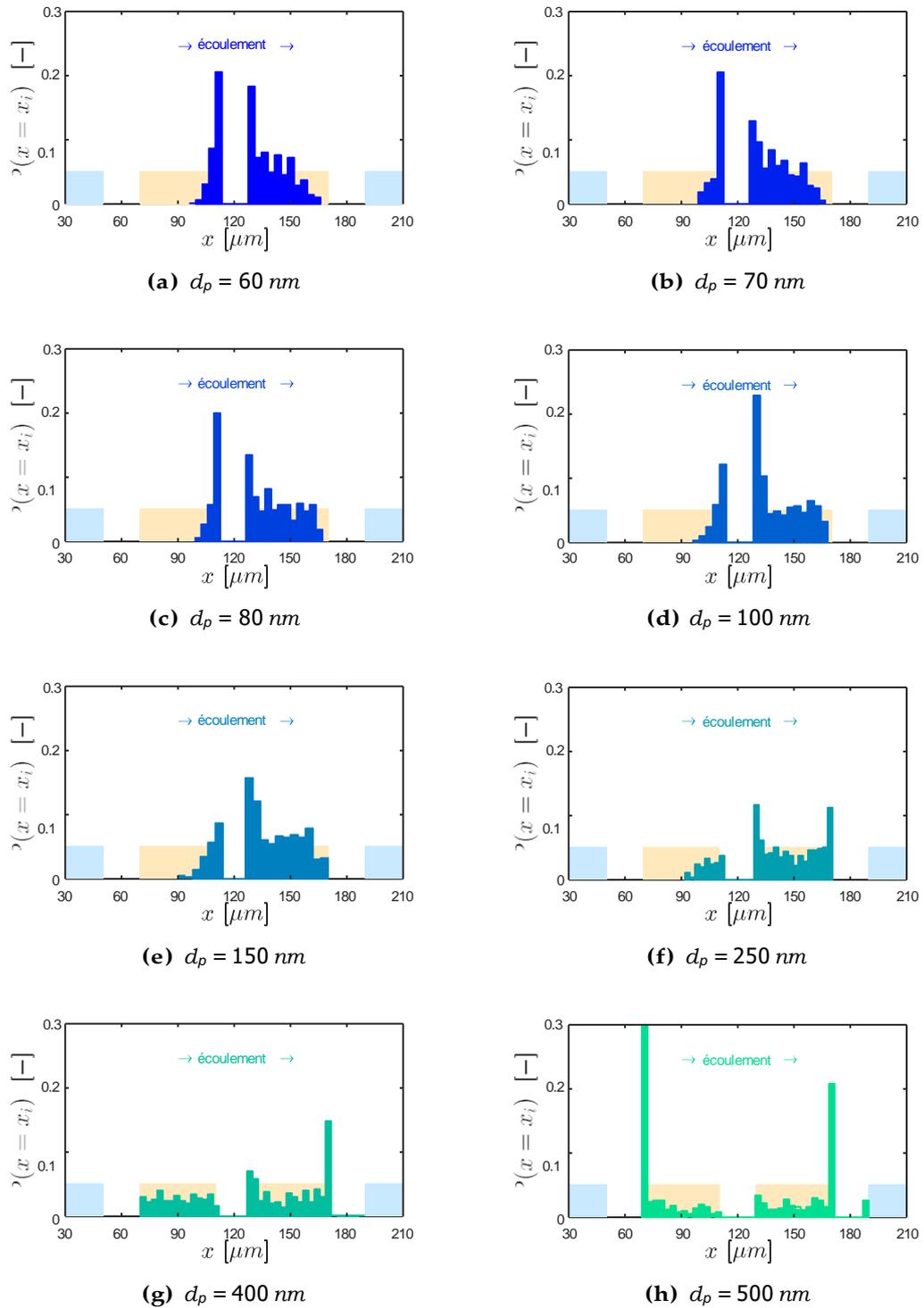


Figure 4.26 – Histogrammes de dépôt pour différents diamètres de particules. Les rectangles bleus représentent la position des électrodes de masse, et les jaunes les électrodes polarisées.

4.6.4 Temps de dépôt

Le temps de dépôt est le produit du nombre d'itérations mis par une particule pour se déposer sur une électrode avec le pas de temps dt . Il est noté t_{dep} et est représentatif de la vitesse moyenne avec laquelle une particule est captée par les électrodes. Dans cette étude, les particules sont toutes injectées en un même point du domaine $[3; 30] \mu m$. La tension de polarisation est fixée à 100 V. Du fait du caractère aléatoire des trajectoires, cinq calculs par taille de particule ont été réalisés, ce qui donne lieu à une moyenne et à un écart-type, visibles sur la Figure 4.27. Les simulations ont également été réalisées avec et sans la force de diélectrophorèse (DEP).

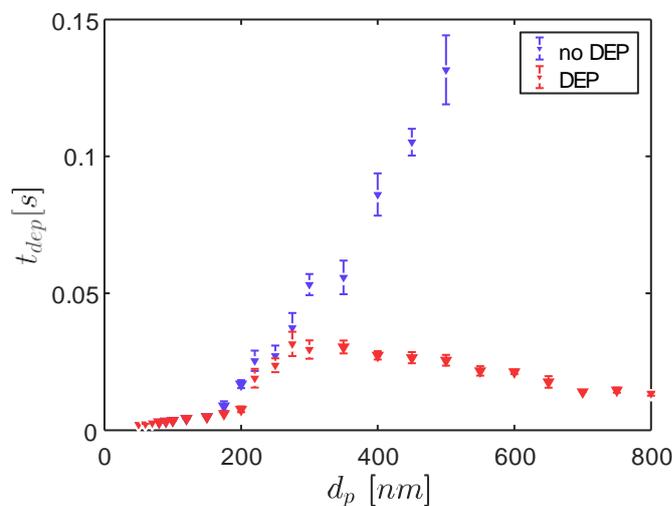


Figure 4.27 – Temps de dépôt en fonction du diamètre et du modèle. L'écart-type de la moyenne est représenté pour cinq échantillons.

On peut remarquer que plus le diamètre des particules est important, plus le temps mis par celles-ci pour atteindre la surface des électrodes est important. Ceci est dû au rapport entre la force de traînée et la force de Coulomb. L'écoulement entraîne les particules au-dessus des électrodes, la diffusion est alors principalement horizontale si bien que la force de Coulomb les dévie plus lentement. Ceci est vrai, quelque soit le modèle, jusqu'au seuil de 300 nm. Au delà de ce diamètre, il y a une dichotomie : la DEP exerce une attraction, ce qui a pour conséquence d'inverser la tendance du temps de dépôt. Les effets aérodynamiques sont entièrement compensés, voire dépassés, au-delà de 300 nm. Ceci signifie que, si la DEP est négligée, les mécanismes électriques seuls seraient incapables d'être les moteurs d'une captation pour les particules les plus massives.

4.7 Croissance des dendrites

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les résultats obtenus avec le modèle de dépôt. Ces calculs incluent cette fois le couplage du dépôt avec la mise à jour du

champ électrique (cf. Section 4.4.2) et du champ aérodynamique (cf. Section 4.3.2). Les calculs sont analogues à ceux réalisés par Teike *et al.* [35] mais différent de ces derniers en plusieurs points :

- La géométrie des électrodes. Nous considérons ici des électrodes de $40 \mu m$ séparées d'un espace variant de 10 à $20 \mu m$. Ces distances étaient toutes deux de $100 \mu m$ dans l'étude de Teike *et al.*. Le modèle a donc été adapté aux spécificités du capteur étudié.
- La tension de polarisation. Cette grandeur est adimensionnée dans l'étude de Teike *et al.*, nous les valeurs comprises entre 20 et 100 V.
- La vitesse de l'écoulement de Couette. Cette grandeur est également adimensionnée dans l'étude de Teike *et al.* et sera égale à $0.2 m \cdot s^{-1}$ dans notre étude.
- Le bilan des forces. Il est complété par la diélectrophorèse.

L'objectif de ce paragraphe est de conduire une étude phénoménologique sur les mécanismes de captation en jeu pour la formation des dendrites de suie. Pour cela, les principaux paramètres dont nous étudierons l'impact seront le diamètre d_p et la tension de polarisation V_{pol} . Nous nous pencherons aussi sur la distance inter-électrode. Ici, nous nous intéresserons principalement aux mécanismes de captation à très courte portée. C'est pourquoi l'impact de la vitesse du fluide n'est pas étudié ici, et nous choisirons u_{cis} comme étant constante.

4.7.1 Exemple de construction de dendrite

Avant d'entrer dans le vif du sujet, intéressons nous au résultat typique d'une simulation. Nous avons considéré un aérosol mono-disperse de particules de diamètre $100 nm$, soumis à un flux d'air dont la vitesse de cisaillement est de $u_{cis} = 0.2 m/s$. Les électrodes sont polarisées avec une tension $V_{pol} = 100 V$. Enfin, les mailles de collisions font $500 nm$ de côté et la loi de sous-maille est telle que $K_{DEP} = 5$. Vingt particules sont injectées aléatoirement au voisinage des électrodes ($x \in [50; 70] \mu m$ et $y \in [10; 20] \mu m$) et régulièrement (toutes les 10^4 itérations). Le nombre total d'itérations est 10^5 , il y a donc 200 particules qui sont injectées en tout dans le domaine.

La Figure 4.28 représente le résultat de ce calcul. En arrière plan figurent les champs d'intérêt pour cette simulation, c'est-à-dire les normes et composantes de \underline{E} et \underline{u} . Comme on peut le voir, le dépôt est effectivement couplé à ces champs. La présence de la dendrite modifie localement le champ électrique. Ceci avait été identifié comme le moteur de la formation des dendrites par Teike *et al.* [35]. De plus, les constructions influent sur le champ de vitesse. Comme on peut le voir ici, la vitesse du fluide est peu impactée par la présence d'obstacle : la composante u_y est restée petite devant la composante u_x (un ordre de grandeur de différence). De plus, au voisinage de la paroi, le fluide est de plus en plus ralenti, ce qui a pour conséquence de diminuer d'autant la force de traînée au profit des forces électriques. Ces dernières augmentent en effet, puisque la norme du champ \underline{E} est accrue à l'extrémité de la dendrite. En se rapprochant de l'électrode, le gradient ∇E^2 augmente également, ce qui a tendance à aussi tendance à accroître les effets diélectrophorétiques. L'importance des forces électriques sera plus extensivement développé dans la suite de cet exposé.

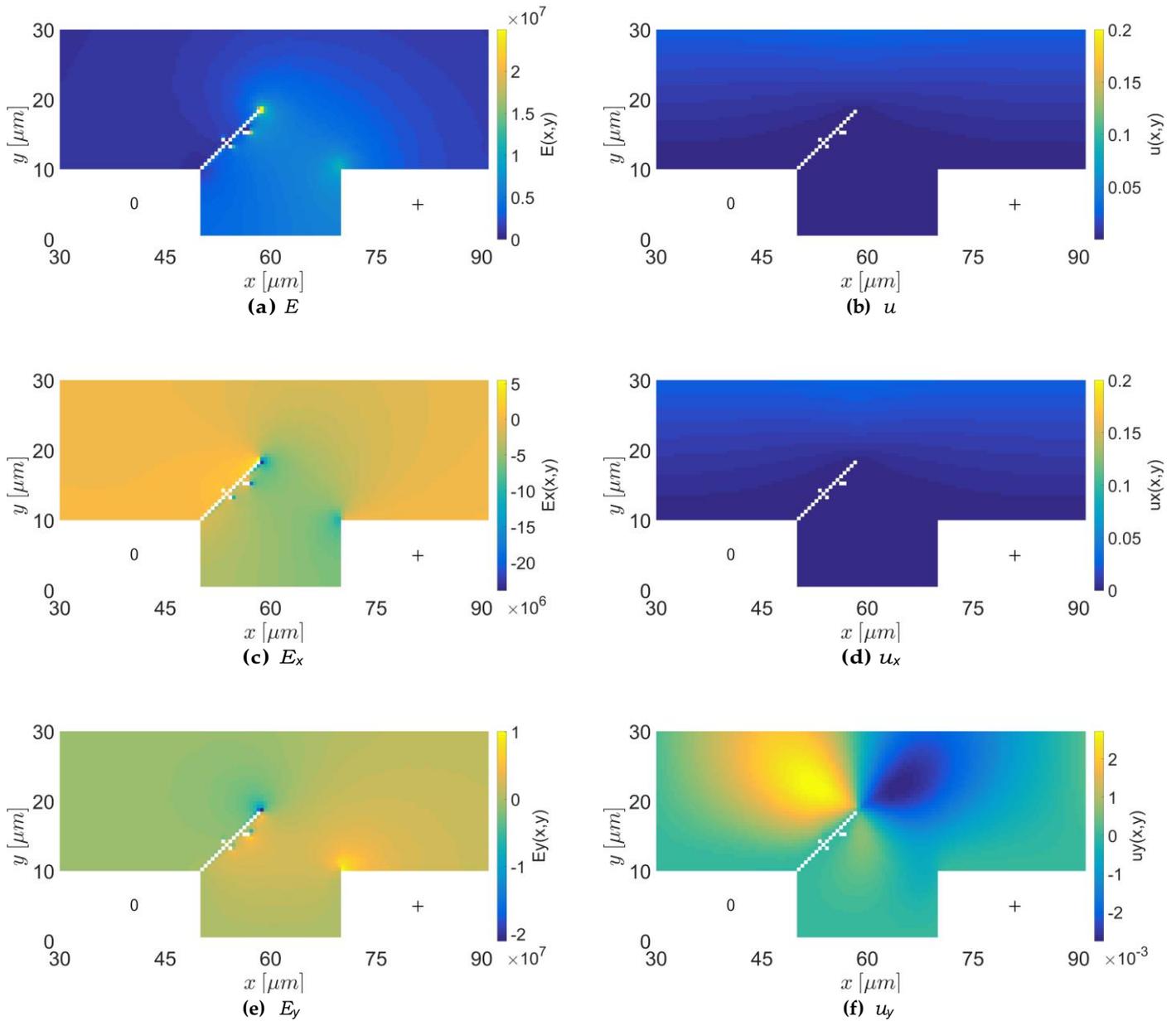


Figure 4.28 – Exemple de dendrite simulée par le modèle de dépôt. L'électrode de masse est positionnée à gauche, l'électrode polarisée à droite et sont espacées de $20\ \mu\text{m}$.

On peut également remarquer que la dendrite a une croissance ascendante. Cette observation avait également été faite par Teike *et al.* [35]. Elle peut s'expliquer par la nature du champ électrique : les lignes de forces ne sont pas rectilignes entre les électrodes. Nous avons vu sur la Figure 4.11 (c) qu'elles forment des arcs de cercle. Or, les particules les plus fines sont d'abord sensibles à la force de Coulomb (électrophorèse). En l'absence d'autres forces (la traînée étant très faible au voisinage des électrodes, et la DEP agissant principalement sur des particules plus grandes), les particules suivent donc ces lignes de forces, et la dendrite n'est naturellement que le reflet des trajectoires.

Cette phénoménologie peut paraître surprenante lorsqu'elle est comparée aux observations par microscopie électronique, où des ponts suspendus entre les électrodes sont observés. Le capteur mesure le courant électrique entre les électrodes, courant qui ne peut pas passer si la dendrite n'est pas en contact avec la seconde électrode. On peut supposer que des forces agissent sur la dendrite en cours de formation, puisque la dendrite et l'électrode opposée sont de charge opposées et ont tendance à s'attirer l'une l'autre. Une telle force n'a toutefois pas été implémentée à notre modèle.

Cette introduction nous a permis d'appréhender la construction des dendrites. Nous avons appliqué le modèle de Teike *et al.* à notre système, et nous l'avons enrichi de la diélectrophorèse. On peut désormais se demander si cette dernière force a réellement un impact, et si oui, quel est-il ?

4.7.2 Construction par électrophorèse

Pour étudier l'impact de la diélectrophorèse sur la construction des dendrites, une méthodologie simple a été suivie. Les simulations ont été réalisées avec et sans terme de force diélectrophorétique. Les calculs présentés dans ce paragraphe sont identiques à celui de la Figure 4.28, seule l'équation du mouvement a été modifiée. La force F_{DEP} a d'abord été supprimée de cette équation, puis l'algorithme a été modifié pour supprimer le couplage entre le dépôt de particule et le calcul du champ électrique. Il s'agit d'un calcul réalisé par Teike *et al.* et qui a été reproduit ici dans le but de confirmer que les résultats sont analogues dans le cadre de la présente étude.

La Figure 4.29 représente l'impact du modèle sur la formation des dendrites. Deux cas distincts ont été abordés. Le premier est restitué dans les Figures 4.29 (a), (c) et (e) et correspond à une distance inter-électrode de $20\ \mu\text{m}$. Les images en microscopie électronique montrent que cet espace est parfois réduit par la présence de bulbe de refusion, liés à la gravure laser qui usine l'impression en platine. C'est d'ailleurs sur ces bulbes que les ponts de suie sont formés préférentiellement. Nous avons donc ici considéré une distance inter-électrode alternative de $10\ \mu\text{m}$ (*cf.* Figures 4.29 (b), (d) et (f)).

Tout d'abord, les Figures 4.29 (a) et (b) représentent la construction d'une dendrite sans le couplage avec le champ électrique. La dendrite se résume à une forme ramassée sur elle-même, localisée là où le champ électrique est le plus important : à l'angle de l'électrode de masse. Lorsque la construction est couplée avec le champ électrique (*cf.* Figure 4.29 (c) et (d)) la zone où le champ est le plus important est

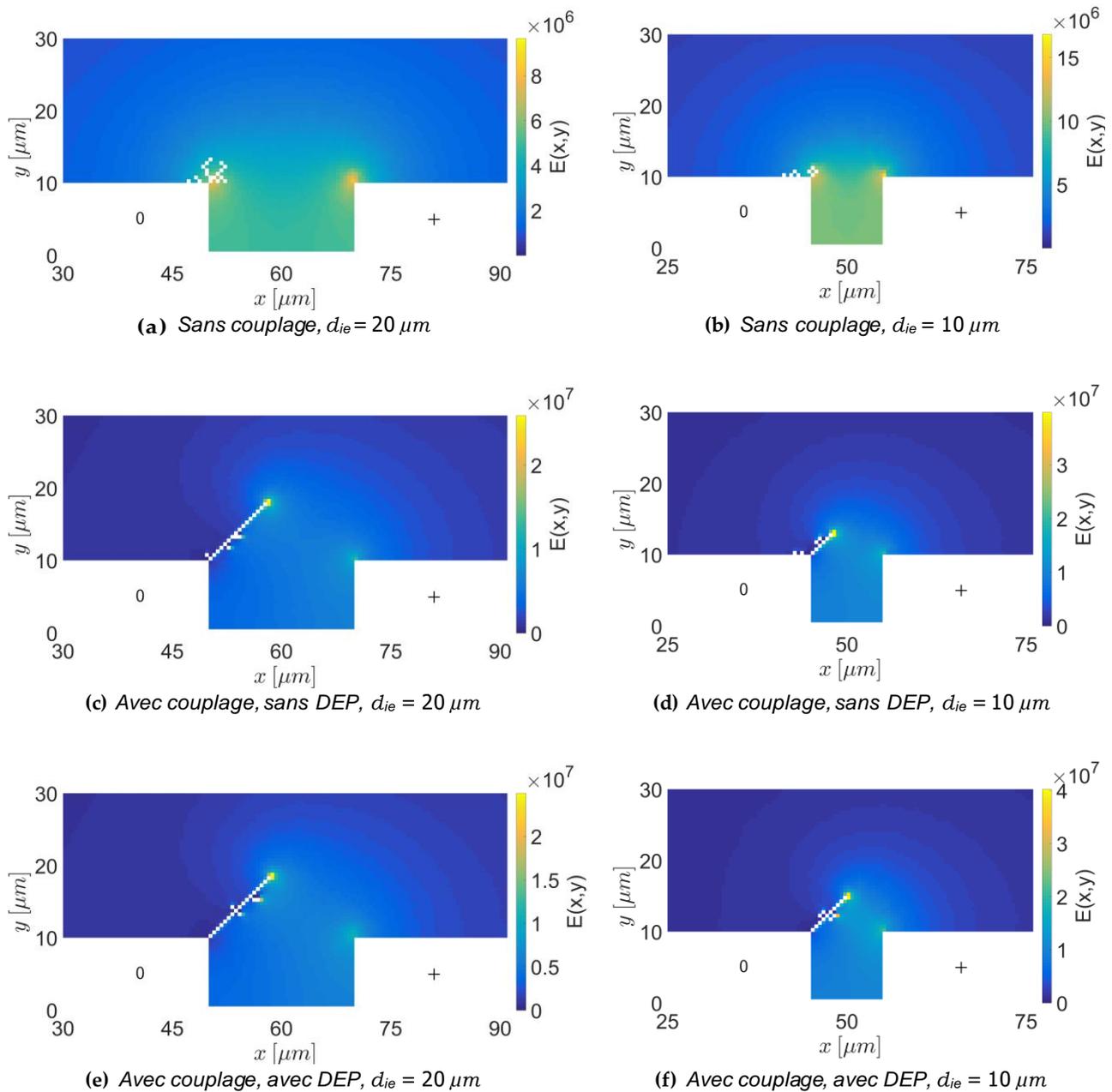


Figure 4.29 – Impact du modèle pour deux distances interdigitées ($d_p = 100 \text{ nm}$, $V_{pol} = 100 \text{ V}$ et $u_{cis} = 0.2 \text{ m.s}^{-1}$). Pour la première colonne $d_{ie} = 20 \mu\text{m}$ et pour la seconde $d_{ie} = 10 \mu\text{m}$. Les résultats sont présentés avec et sans couplage du dépôt avec le champ électrique. Sur les figures (a) et (b), le champ électrique n'est pas influencé par le dépôt des particules.

située au bout de la dendrite. Les particules ont donc tendance à s'y déposer, ce qui a pour effet d'augmenter le champ électrique à l'extrémité de la dendrite à mesure qu'elle grandit, et donc à promouvoir une morphologie linéaire plutôt que trapue. La dendrite croît moins rapidement pour $d_{ie} = 10 \mu m$ car les particules ne se déposent pas exclusivement sur l'angle de l'électrode : deux mailles ont été remplies sur la surface supérieure de l'électrode de masse.

Enfin, lorsque la diélectrophorèse est incorporée à la deuxième loi de Newton, la Figure 4.29 (e) montre une structure similaire à celle de la Figure 4.29 (c). En revanche, lorsque la distance inter-électrode est diminuée et que, par conséquent, le gradient ∇E^2 augmente, on peut constater que la dendrite grandit plus rapidement lorsque la DEP est prise en compte (cf. Figure 4.29 (f)). Dix mailles de collision ont atteint le seuil $K_{dep} = 5$ sans la DEP (d), contre 14 avec la DEP (f), ce qui reflète une différence de vitesse de construction.

Cela vient du fait que toutes les particules ne se déposent pas dans une maille qui atteindra le seuil $K_{dep} = 5$ au cours du calcul. Certaines particules sont déposées dans des mailles qui ne seront jamais achevées. Dans les cas (a) et (d), la trajectoire des particules est davantage guidée par le hasard de la force de Langevin d'une part, et par leur position initiale d'autre part, que dans les autres situations. Dans le cas (f), le nombre de particules utiles (*ie.* qui contribuent à la dendrite) sont plus nombreuses et, malgré le hasard intrinsèque au calcul, elles forment plus aisément une structure linéaire et ordonnée.

Les images en microscopie électronique révèlent des chaînes de nano-particules aussi fines que régulières entre les bulbes de refusion, là où la grandeur ∇E^2 est la plus élevée. Sur de nombreuses images, seule la base des dendrites est constituée d'un amas de particules, tandis qu'entre les électrodes s'étendent des structures semblables à des filaments de suie. Il est raisonnable d'émettre l'hypothèse que la diélectrophorèse joue un rôle dans la forme que prennent les ponts, y compris pour des particules dont la taille est de l'ordre de $100 nm$. Nous avons vu que la DEP avait principalement une influence sur les particules de diamètre supérieur à $500 nm$ à longue portée. Ces calculs montrent que si les particules dont le diamètre est de l'ordre de $100 nm$ sont principalement captées, à longue portée, par la force de Coulomb, leur arrangement à l'échelle de la dendrite est influencée par la diélectrophorèse.

4.7.3 Construction par diélectrophorèse

Nous avons considéré ici des particules dont les dimensions sont particulièrement propices à l'observation de la DEP. Le diamètre des particules est ici de $500 nm$, la tension de $100 V$ et la vitesse de cisaillement est $u_{cis} = 0.2 m/s$. Des particules chargées positivement par une charge élémentaire sont injectées de façon aléatoire entre l'électrode de masse et l'électrode polarisée ($(x, y) \in [50; 70] \times [10; 20] \mu m^2$). Les mailles de collision qui constituent les dendrites font $1 \mu m$ de côté. Les mailles du calcul de dynamique des fluides en LBM font $500 nm$. Dans ces calculs, la vitesse du fluide et le champ électrique sont couplés avec le dépôt des particules : à chaque fois que le nombre maximal de particules par maille est atteint $K_{dep} = 2$, \underline{u} et \underline{E} sont recalculés. Les calculs n'ont été réalisés que pour une distance inter-électrode

de $d_{ie} = 20 \mu m$ en raison de la taille importante des mailles de collision et pour conserver une résolution décente.

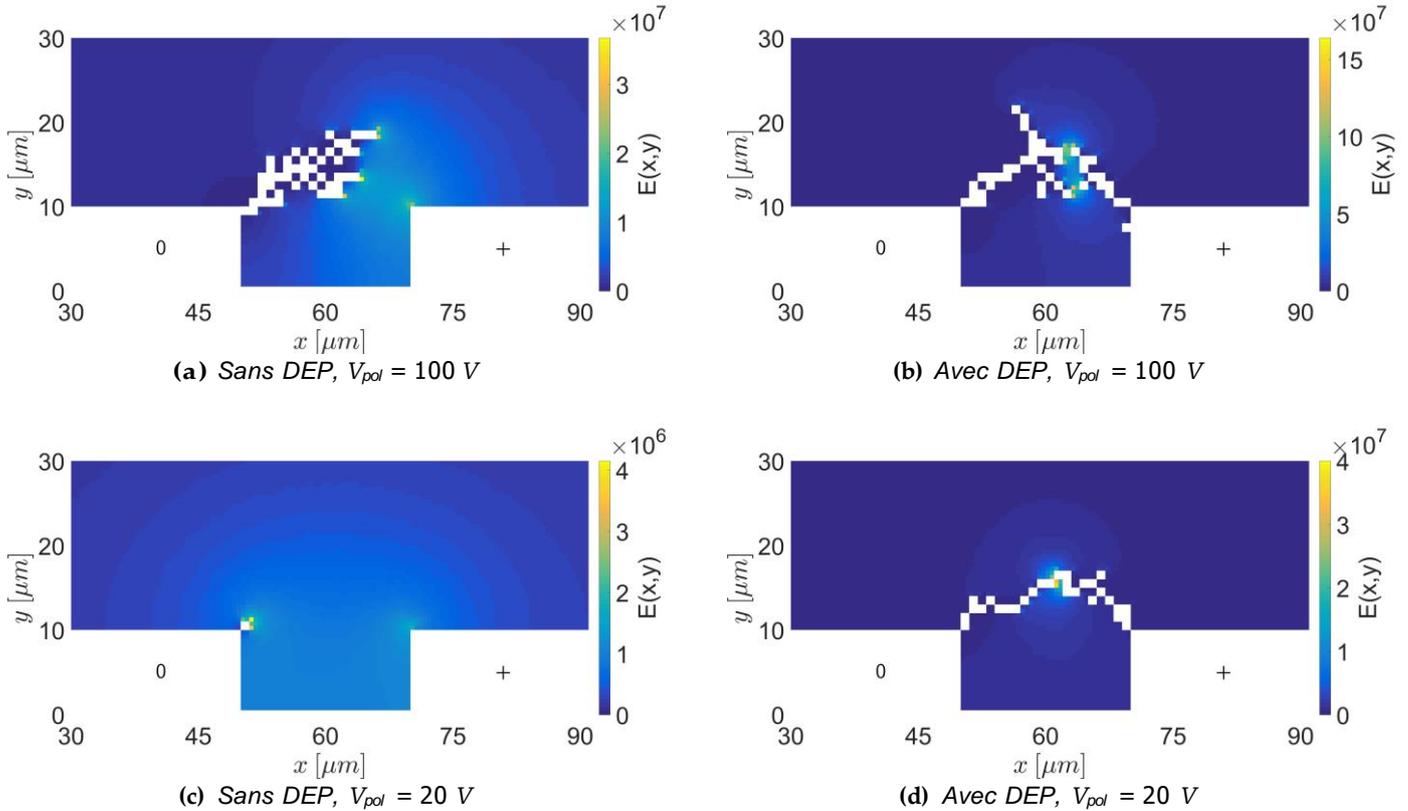


Figure 4.30 – Impact de la diélectrophorèse pour $d_p = 500 \text{ nm}$ et pour deux polarisations (100 V et 20 V) pour des particules chargées $+e$ uniquement. L'arrière plan représente la norme du champ électrique.

La Figure 4.30 (a) représente les résultats de ces simulations en supprimant le terme de la force DEP dans l'équation du mouvement. La dendrite simulée est nettement plus massive que lors des calculs avec des particules plus fines. La taille plus importante des particules implique un paramètre K_{dep} inférieur aux cas précédents. Ceci conduit à une randomisation dans l'évolution de la dendrite là où une valeur supérieure de K_{dep} avait tendance à moyenniser l'allure des dendrite.

La Figure 4.30 (b) reporte le résultat de la simulation incluant la force diélectrophorétique. En plus de la dendrite grandissant depuis l'électrode de masse, une autre dendrite naît de l'électrode polarisée. Ce phénomène, dû à l'élévation au carré du champ électrique dans l'expression de la diélectrophorèse (proportionnelle à ∇E^2), illustre l'importance croissante que prend cette force quand la taille des particules augmente. Ainsi, pour des particules de 500 nm de diamètre, la prise en compte du phénomène de diélectrophorèse semble indispensable pour représenter correctement la captation, mais aussi la formation des dendrites de suie sur un capteur résistif dont les électrodes sont suffisamment proches. Cet effet est *a fortiori* présent pour une distance inter-électrode inférieure à $d_{ie} = 20 \mu m$.

Enfin, les mêmes calculs ont été réalisés pour une tension de 20 V. Lorsque la

DEP n'est pas prise en compte dans le modèle, très peu de particules se déposent car elles sont entraînées par le flux (*cf.* Figure 4.30). Les forces visqueuses prédominent sur la force de Coulomb. Lorsque la DEP est ajoutée au modèle, la formation d'un pont est observée. Une polarisation inférieure semble favoriser ce processus car cela limite la répulsion par électrophorèse. La dendrite croît donc de façon équilibrée de part et d'autre du fossé inter-électrode.

4.7.4 Vitesse de croissance dendritique

Impact de la taille

Le pas de temps numérique dt pour le suivi lagrangien dépend de la taille des particules, du fait de la modélisation du mouvement brownien. Afin de comparer les vitesses de formation des dendrites pour différents aérosols monodisperses, il est indispensable d'homogénéiser la fréquence d'injection, en Hertz. Pour réaliser cela, il est possible de modifier soit le nombre de particules injectées n_{part} , soit de modifier le nombre d'itérations entre deux injections n_{inj} . Dans ce cas, c'est n_{inj} qui sera recalculé car il est très grand devant n_{part} , si bien que des erreurs d'arrondi impacteront moins la simulation. Nous fixerons $n_{part}=10$. Les paramètres de chacune des simulations sont restitués dans la Table 4.3.

d_p	nm	100	125	150	250	350	500
dt	s	5.1×10^{-8}	6.8×10^{-8}	8.7×10^{-8}	1.8×10^{-7}	3.2×10^{-7}	5.8×10^{-7}
K_{dep}	-	5	4	3	4	3	2
dx_{coll}	μm	0.5	0.5	0.5	1	1	1
t_{inj}	-	10 000	7502	5867	2776	1615	877
N_t	-	100 000	75022	58671	27759	16150	8772

Table 4.3 – Paramètres pour comparer les vitesses de construction des dendrites.

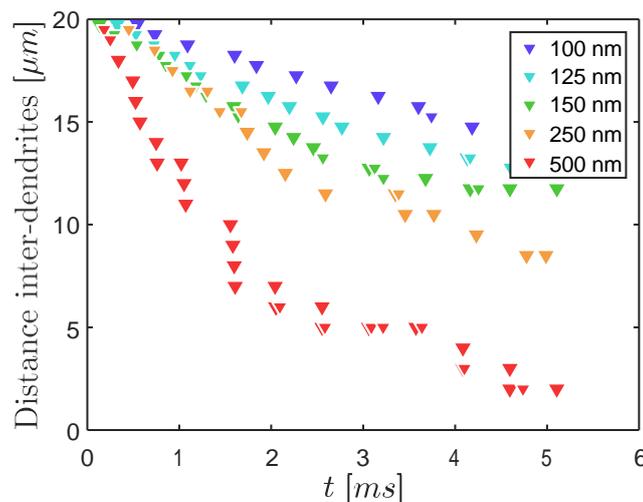


Figure 4.31 – Impact du diamètre sur l'évolution de la distance entre deux dendrites.

La Figure 4.31 représente l'évolution de la distance minimale séparant deux dendrites grandissant de part et d'autre du fossé inter-électrodes. Les simulations ont été réalisées pour $V_{pol} = 100 V$, $u_{cis} = 0.2 m/s$ et $d_{ie} = 20 \mu m$. La longueur des dendrites correspond à l'abscisse de la particule la plus éloignée de son point d'attache à l'électrode. On peut voir que dans la gamme de taille étudiée ici, la vitesse de croissance augmente avec la taille des particules. Ceci est dû à deux facteurs : la contribution géométrique, modélisée par le paramètre K_{dep} , et la DEP, dont l'intensité dépend du diamètre des particules. Ceci montre qu'en plus d'avoir un dépôt préférentiel pour former des dendrites, les particules les plus grosses contribuent davantage à leur formation, conformément aux observations expérimentales.

Impact de la tension de polarisation

Dans ces simulations, deux aérosols mono-disperses de diamètre $d_p = 100 nm$ et $d_p = 500 nm$ ont été injectés au voisinage des électrodes, polarisées avec une tension de $100 V$ ou de $20 V$. La Figure 4.32 représente l'évolution de la longueur de la dendrite dans ces quatre cas.

Pour l'aérosol de $100 nm$, l'initiation de la dendrite est plus longue sous $V_{pol} = 20 V$. Ceci s'explique d'abord par la vitesse moins importante des particules. Une vitesse faible procure une importance croissante à la diffusion brownienne, ce qui a pour conséquence de randomiser le dépôt. Le nombre de particules utiles à la croissance du pont diminue donc. Cette tendance est également en accord avec les observations expérimentales. On peut également remarquer qu'une fois amorcée, la dendrite jouit d'une vitesse de croissance au moins égale au cas où $V_{pol} = 100 V$.

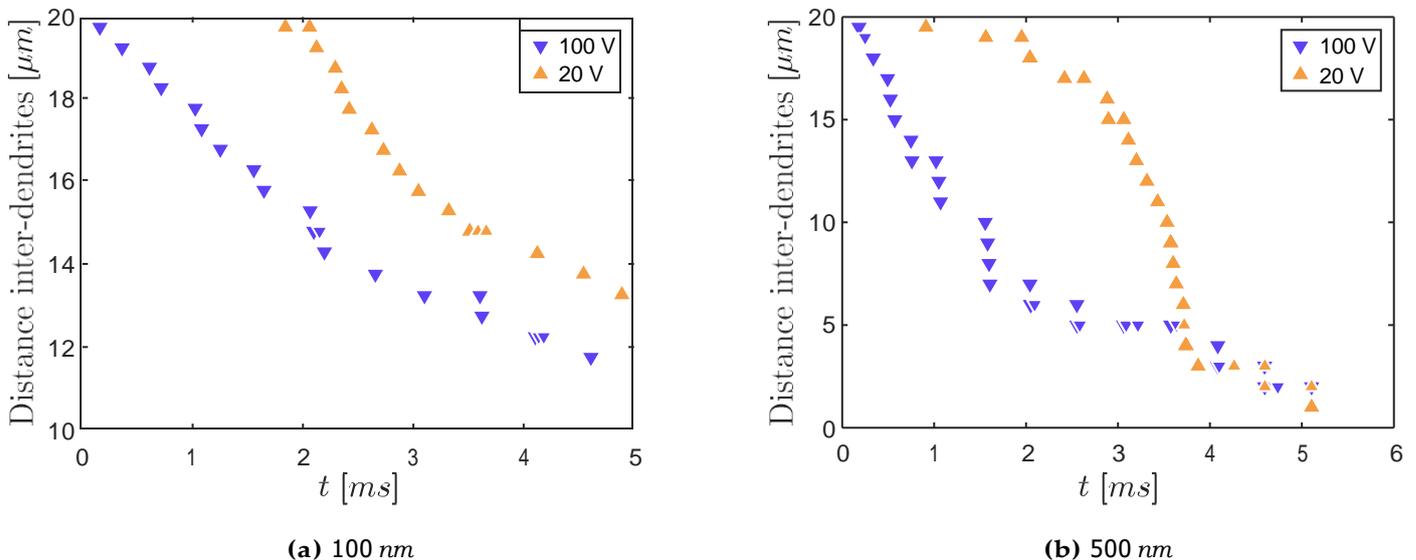


Figure 4.32 – Impact de la tension de polarisation sur l'évolution de la distance entre deux dendrites.

Pour l'aérosol de $500 nm$, la progression est d'abord plus lente sous $V_{pol} = 20 V$, mais fini par rattraper la dendrite en construction sous $100 V$. Contrairement aux

particules de 100 nm, l'aérosol est ici principalement capté par la diélectrophorèse. En effet, il a été vu sur la Figure 4.13 que pour des particules de 500 nm, la diélectrophorèse est prédominante sur l'électrophorèse. De plus, en réduisant la tension, la diélectrophorèse reste prédominante, mais la force de Coulomb voit son intensité diminuer. Cette observation conduit donc à supposer qu'il existe une tension optimale, résultant d'un équilibre entre attraction par diélectrophorèse et répulsion par électrophorèse. Cette tension serait naturellement dépendante de la taille des particules.

4.7.5 Conclusions sur la croissance des dendrites

Sensibilité du capteur

Le modèle présenté ici s'inspire de l'article de Teike *et al.* [35], montrant qu'il est indispensable de coupler plusieurs physiques pour modéliser correctement la construction des dendrites sur un capteur résistif. En appliquant ce modèle au capteur développé par EFI Automotive, dont l'espace inter-électrode est plus fin que celui du capteur étudié par Teike *et al.*, un fort gradient de champ électrique a été mis en évidence entre les électrodes. Or, ceci a pour conséquence de générer une force modifiant la trajectoire des particules conductrices électriquement. Cette force est appelée diélectrophorèse et génère une migration des particules vers les zones de haut gradient de champ électrique, dans notre cas.

Bien que la DEP n'ait aucun impact sur les particules de 100 nm à longue portée, il semblerait qu'elle ait de l'importance pour la construction des dendrites, si le gradient est suffisamment élevé. Or, expérimentalement, la construction des dendrites est principalement observée là où le champ électrique et son gradient sont les plus importants. La DEP peut donc être perçue, dans ce cas, comme un terme améliorant la précision du modèle.

En ce qui concerne les particules les plus massives ($d_p > 300$ nm), la DEP joue un rôle important et modifie la phénoménologie de construction des dendrites puisque sans elle, la dendrite ne relie pas les électrodes (*cf.* Figure 4.30). La construction n'est plus opérée d'un seul côté du fossé inter-électrode, mais est initiée sur chacune des électrodes. Ainsi, en plus d'une contribution géométrique plus importante de ce type de particules, le phénomène de DEP améliore, en théorie, nettement la formation de ponts. Ceci explique pourquoi le capteur résistif est plus sensible aux particules les plus massives. Cette conclusion rejoint les observations expérimentales (*cf.* Section 3.3.4).

Voies d'amélioration du modèle

Néanmoins, les simulations n'aboutissent à des ponts que lorsque la force de diélectrophorèse est prédominante ($d_p = 500$ nm). Dans le cas contraire, seules des dendrites sont simulées. Or, expérimentalement, ce sont bel et bien des ponts qui sont aussi observés, y compris pour un diamètre de l'ordre de $d_p = 100$ nm. Il y a plusieurs explications à ceci, mais les plus probables sont :

1. Une force électrique et/ou diélectrique agirait sur la dendrite, ce qui l'atti-

rerait naturellement vers l'électrode de signe opposé, ou bien vers la zone de plus haute densité de champ électrique ;

2. La diélectrophorèse agirait sur les particules, même les plus fines.

Examinons ces hypothèses. Une dendrite est constituée de suie, qui est un matériau conducteur. Par conséquent, lorsqu'elle est soumise à un champ électrique, les charges ont tendance à se déplacer vers son extrémité. On peut donc envisager que cette localisation de charges dans le champ électrique engendre un moment qui fasse tourner la dendrite autour de son point d'attache. Les signes étant opposés, la dendrite pourrait alors être attirée par l'électrode polarisée. Ceci aurait pour effet de constamment rapprocher l'extrémité de la dendrite de l'électrode jusqu'à fermeture du pont.

La seconde hypothèse ne semble pas la plus probable du point de vue de la dimension des particules. En effet, nous avons jusqu'à présent étudié des particules sphériques. Or, les particules réelles ne le sont pas. Nous avons choisi un diamètre de 100 nm pour étudier un ordre de grandeur. Les agrégats dont le diamètre de mobilité d_m est compris entre 60 et 100 nm ont, à volume équivalent, un diamètre compris entre 40 et 70 nm. La diélectrophorèse est donc, de ce point de vue, un peu plus faible dans la réalité. Toutefois, il est possible que le gradient de champ électrique soit sous-évalué dans ce modèle. Les électrodes rectangulaires sont en réalité composées de nombreuses aspérités qui, en 3D, pourraient donner lieu à des gradients de champ électrique localement supérieur à celui considéré ici. Si la diélectrophorèse est sousestimée dans ce modèle, cela serait probablement du fait de la topologie des électrodes, trop régulières.

4.8 Facteur de forme des particules de suie

Pour améliorer le réalisme du modèle de captation des particules de suie, il est possible d'implémenter un facteur de forme aux particules. Ceci permet un gain de précision pour le calcul de la traînée aérodynamique. Afin de calculer ce coefficient pour de nombreux paramètres, une méthode numérique spécifique a été développée. Elle a été implémentée et approfondie au cours du stage de Rafail Iosifidis à IFP Energies Nouvelles en 2016 [131].

4.8.1 Méthodologie

Stratégie numérique

La force de traînée, notée F_{drag} a pour expression (cf. Section 1.6.3) :

$$F_{drag} = x \frac{3\pi\eta_f d_p}{C_c(d_p)} v_r \quad (4.30)$$

Où le terme x est le facteur de forme de la particule et dépend de sa dimension fractale D_f , du nombre de sphérules N_{pp} qui la composent et de leur diamètre d_{pp} . La méthodologie présentée (cf. Figure 4.33) ici est mise en place afin de déterminer

la relation :

$$x = f(D_f, N_{pp}) \quad (4.31)$$

Pour étudier l'impact des paramètres liés à la morphologie des particules, nous avons généré des agrégats grâce à une méthode stochastique, introduite dans l'article de Sturm *et al.* [99]. Cette méthode permet de construire une particule en ayant au préalable choisi son nombre de sphérules N_{pp} et sa dimension fractale D_f . L'algorithme, les constantes utilisées ainsi qu'un échantillon des particules générées avec cette méthode sont rapportés en Annexe G.

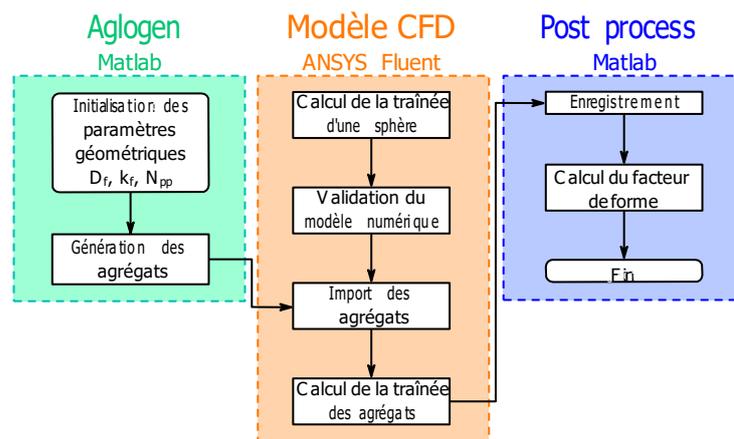


Figure 4.33 – Logigramme pour le calcul du facteur de forme [131].

Un modèle en dynamique des fluides est utilisé pour calculer la traînée d'un agrégat. Ce modèle a été réalisé sous ANSYS Fluent et a été au préalable validé en comparant la traînée d'une sphère calculée par cette méthode avec la loi de Stokes. Les résultats ainsi acquis sont finalement post-traités pour le calcul du facteur de forme $x = \frac{F_{\text{agrégat}}}{F_{\text{sphère}}}$. Dans cette méthode, la force de traînée est calculée en régime continu puis corrigée avec le coefficient de Cunningham.

Domaine de calcul

Les conditions aux limites utilisées pour le calcul numérique de l'aérodynamique autour d'une particule de suie sont typiques de ce type de simulations. L'entrée d'air est modélisée par une vitesse normale à la paroi. Dans cette étude, la norme de la vitesse est fixée à 1 m/s pour toutes les simulations. La valeur a peu d'importance car l'objectif est de comparer la traînée d'une particule sphérique avec celle d'un agrégat de dimensions comparables, indépendamment des paramètres liés au fluide. Il est toutefois primordial de se placer dans des conditions favorables à un écoulement de Stokes, c'est-à-dire $Re_p \ll 1$. Pour une vitesse de 1 m/s et pour une particule sphérique de 100 nm de diamètre, on calcule effectivement que $Re_p = 3.1 \times 10^{-3}$.

L'agrégat est quant à lui, modélisé par des frontières statiques. L'objectif de ce calcul n'est pas de calculer sa trajectoire, mais bien de calculer les efforts que le gaz exerce sur la particule. Il s'agit d'un calcul monophasique autour d'un obstacle

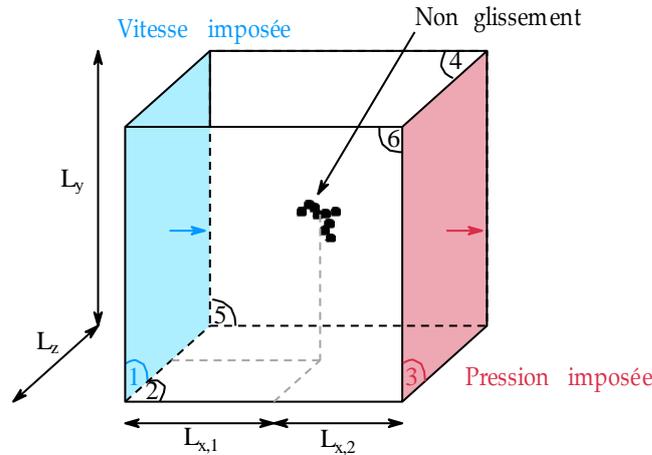


Figure 4.34 – Conditions aux limites pour les calculs CFD.

constitué par l'agrégat. Une condition de non-glissement est assignée aux parois de la particule. Notons que comme ces conditions ne sont pas valides pour les nanoparticules, la traînée sera corrigée par le facteur de Cunningham (cf. Section 1.6).

La sortie est modélisée par une pression nulle imposée à la face opposée. De plus, les faces 5 et 6 sont quant à elles deux à deux symétriques, tout comme les faces 2 et 4 (cf. Figure 4.34).

Les dimensions $L_x = L_{x,1} + L_{x,2}$, L_y et L_z du domaine de calcul ont une influence sur la solution : plus le domaine est grand, plus la solution est juste mais plus les calculs seront longs. Par comparaison avec la loi analytique de Stokes, Iosifidis *et al.* [131] ont montré que le calcul de la traînée était correct pour les paramètres géométriques rapportés dans la Table 4.4. Notons que dans le cas où $L_x = L_y = L_z = 100 \times r_p$, l'erreur sur la force de traînée est inférieure à 10 %.

Symbole	Valeur
$L_{x,1}$	$160 \times r_p$
$L_{x,2}$	$184 \times r_p$
L_y	$320 \times r_p$
L_z	$320 \times r_p$

Table 4.4 – Dimensions du domaine de calcul [131]. Dans le cas de particules fractales, r_p se rapporte au rayon de la sphère enveloppant l'agrégat.

Calcul de la traînée d'un agrégat

Le logiciel ANSYS Fluent résout les équations de Navier-Stokes pour un écoulement d'air stationnaire, laminaire et incompressible au voisinage d'un agrégat. Contrairement au cas simple d'une particule sphérique, les particules fractales ont des géométries complexes. Les calculs nécessitent par conséquent une attention particulière quant au choix du solveur et au maillage. Les méthodes numériques sont détaillées dans l'Annexe H. Une fois le champ de pression et le champ de vitesse

calculés, ces grandeurs sont intégrées sur la surface de la particule. On parle d'une approche eulérienne. L'intégration de la pression donne, par exemple, la force :

$$F_p = \sum_{i=1}^n (P_i - P_{ref}) dA_i \underline{n}_i \quad (4.32)$$

qui constitue la somme sur les n faces composant la surface totale de la particule, et où P_{ref} constitue une pression de référence, P_i est la pression à la i -ème face, dA_i sa surface et \underline{n}_i son vecteur normal. Un calcul analogue est réalisé pour les efforts visqueux, notés F_v . La force totale exercée par le fluide sur les parois de la particule est donnée par :

$$F_{drag} = F_p + F_v \quad (4.33)$$

4.8.2 Résultats

Lignes de courant et pression

Les lignes de courant et la pression au voisinage d'un agrégat permettent d'une part d'illustrer la façon dont les forces sont calculées (cf. Figure 4.35). D'autre part, elles permettent de visualiser et de vérifier qu'il s'agit bien d'un écoulement de Stokes. En effet, on peut voir que les lignes contournent délicatement l'agrégat et ne génèrent pas de vorticité ou de recirculation derrière l'obstacle constitué par la particule. Cette hypothèse est utilisée pour le suivi lagrangien des particules.

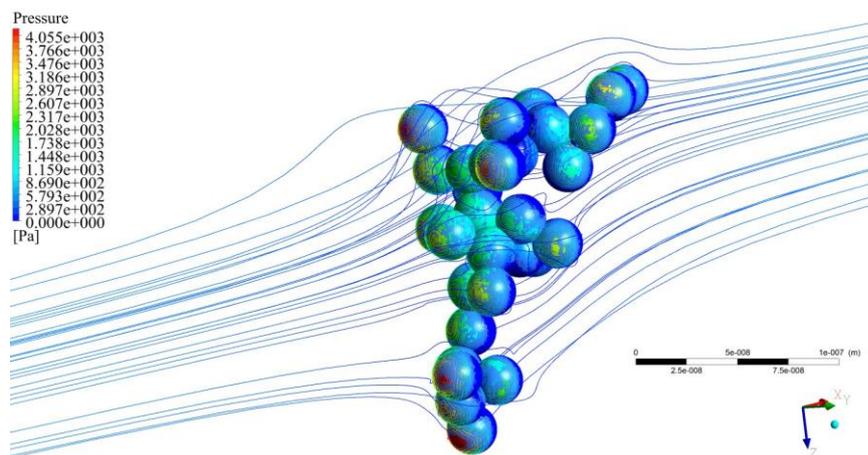


Figure 4.35 – Lignes de courant et tracé de la pression sur un agrégat ($D_f = 1.8$ et $N_{pp} = 30$) [131].

Nous pouvons également faire remarquer que la vitesse du fluide représente, dans la réalité, la vitesse relative d'une particule par rapport au fluide puisqu'ici la particule est immobile. Les vitesses en jeu dans le modèle de captation étant plus faibles encore, l'hypothèse d'un écoulement de Stokes est vrai *a fortiori*.

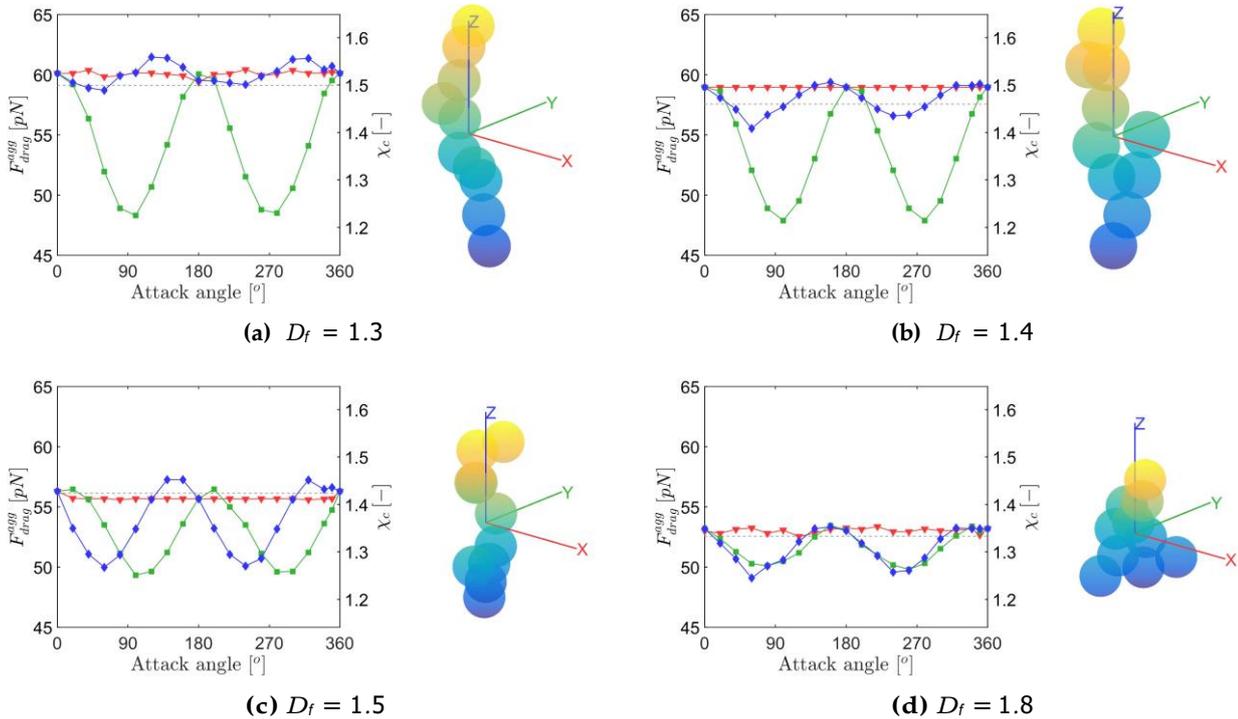


Figure 4.36 – Traînée pour différentes particules de $N_{pp} = 10$ sphérules sous différents angles d'attaque [131]. Chaque couleur représente la traînée calculée lors de la rotation autour de l'axe de couleur correspondante. La ligne en pointillés grise représente la loi de Stokes dans le régime continu en tenant compte du facteur de forme calculé dans ce travail.

Impact de l'angle d'attaque

Par définition, un agrégat de suie n'est pas isotrope. D'un point de vue aérodynamique, ceci a pour conséquence que sa traînée dépend de son orientation. Une analyse de sensibilité a été réalisée pour plusieurs particules contenant $N_{pp} = 10$ sphérules, dont les résultats sont restitués sur la Figure 4.36. Pour chaque particule, on définit un référentiel (O, x, y, z) dont le centre O est le centre de masse de la particule. Les sphérules ont subi une rotation totale de 360 degrés autour de chacun des axes, et la traînée y est calculée tous les 20 degrés.

Les graphiques montrent que si la traînée reste stable lors de la rotation autour de la direction du fluide (Ox), elle peut varier notablement selon l'angle d'attaque. L'amplitude de la variation est toutefois dépendante de la dimension fractale puisque la différence s'élève à 27 % pour la particule de dimension fractale $D_f = 1.3$, et est seulement de 8.5 % pour $D_f = 1.8$. Cette dernière valeur est en particulier celle que l'on attend pour les particules étudiées dans ce travail. L'effet de l'orientation d'une particule de suie dans le flux peut donc être négligé dans une première approximation.

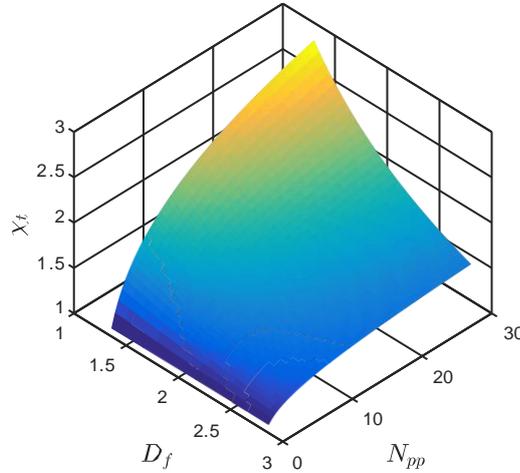


Figure 4.37 – Facteur de forme en régime transitoire x_t [131].

Facteur de forme

La force de traînée a été calculée en faisant varier deux paramètres : le nombre de sphérules N_{pp} (de 4 à 30) et la dimension fractale D_f (de 1.4 à 2.5). Pour chaque couple (N_{pp}, D_f) , 10 particules différentes ont été générées et ont fait l'objet d'un calcul de traînée. Ceci représente un total de 3000 simulations, soit environ 600 heures avec un processeur de 6 GHz. La traînée a donc été moyennée pour chacun des points.

Grâce à l'ensemble de ces résultats, une corrélation entre la force de traînée et le nombre de particules primaires composant les agrégats a été déterminée [131]. Une telle corrélation avait été identifiée par Binder *et al.* [132] pour une gamme de dimensions fractales comprises entre $D_f = 1.8$ et $D_f = 1.9$:

$$F_{drag} = 3\pi\eta_f \nu_r d_{pp} N_{pp}^a \quad (4.34)$$

Où a est un exposant qui ne dépend que de D_f . De plus, le diamètre de mobilité est relié à la force de traînée par la relation [133] :

$$F_{drag} = 3\pi\eta_f \nu_r d_m \quad (4.35)$$

Grâce aux simulations de la force de traînée en fixant $N_{pp} = 10$, une corrélation de la forme :

$$F_{drag} = 3\pi\eta_f \nu_r d_{pp} \frac{K_1}{D_f^{K_2}} \quad (4.36)$$

a été établie avec la dimension fractale $D_f \in [1; 3]$. Les constantes K_1 et K_2 sont des paramètres de corrélation et valent $K_1 = 3.55$ et $K_2 = 0.361$. Grâce aux relations (4.34) et (4.36) par identification, il vient que :

$$a = 0.361 \times \log \frac{33.43}{D_f} \quad (4.37)$$

De plus, d'après DeCarlo *et al.* [77], le facteur de forme peut s'écrire, en régime transitoire :

$$x_t = \frac{C_c(d_{ve}) d_m}{C_d(d_m) d_{ve}} \quad (4.38)$$

Or, en égalant les relations (4.34) et (4.35) :

$$d_m = d_{pp} N_{pp}^a \quad (4.39)$$

Et comme par définition le diamètre à volume équivalent peut s'exprimer $d_{ve} = N_{pp}^{\frac{1}{3}} d_{pp}$, on peut réécrire (4.38) :

$$x_t = \frac{C_c(d_{ve})}{C_d(d_m) N_{pp}^a} N_{pp}^{a-\frac{1}{3}} \quad (4.40)$$

Cette relation permet finalement de représenter le facteur de forme en fonction des paramètres d'intérêt (*cf.* Figure 4.37). L'intérêt de la méthode numérique est de cartographier un certain nombre de paramètres pour en tirer le facteur de forme qui servira à décrire, avec une meilleure précision, les forces aérodynamiques et par extension les trajectoires des particules de suie. Une extension de ce travail pourrait être d'évaluer l'impact du pré-facteur fractal.

4.9 Electrorotation

L'électrorotation est une conséquence de la polarisation d'une particule par un champ électrique. En effet, l'action du champ électrique sur un dipôle génère un moment, noté M_E , engendrant un mouvement de rotation. Il existe plusieurs approches numériques de ce phénomène, mais nous nous intéresserons en particulier à celle de Winter et Welland [134], pour sa simplicité de mise en oeuvre.

Ce modèle est particulièrement adapté à la mécanique du point et se base sur le principe fondamental de la dynamique appliqué à une particule immergée dans un fluide. Ce modèle est initialement destiné à la prédiction du comportement de particules biologiques ellipsoïdales. Le travail présenté ici conserve la méthode proposée par Winter et Welland mais l'applique à une particule de suie immergée dans l'air. L'objectif de cette étude est d'étudier l'orientation d'une particule de suie dans un champ électrique typique des conditions de fonctionnement du capteur.

4.9.1 Equation de la rotation

Le détail des calculs menant à l'équation de la rotation d'une ellipsoïde polarisée par un champ électrique (*cf.* Figure 4.38) est restituée dans l'Annexe I. Winter et Welland montrent que dans ces conditions, la projection de la deuxième loi de Newton s'écrit :

$$\frac{4}{15} \pi \rho_p a b c (a + b) \theta_z + \frac{16}{3} \pi \nu_f \frac{a^2 + b^2}{\alpha^2 A_x + b^2 A_y} \theta_z^i = \frac{2}{3} \pi a b c \epsilon_0 (\epsilon_p - \epsilon_m) \left(\frac{1}{k_x} - \frac{1}{k_y} \right) E^2 \sin 2\theta_z \quad (4.41)$$

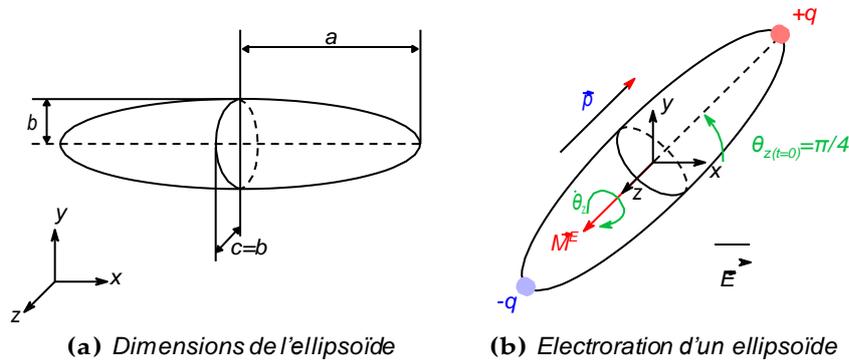


Figure 4.38 – Electrorotation d'un ellipsoïde.

Cette équation représente l'évolution de l'angle $\theta_z(t)$ entre le grand axe de l'ellipsoïde et le champ électrique. Ici, nous considérerons une rotation autour d'un seul axe, normal au grand axe de l'ellipsoïde. Une hypothèse pour établir cette équation différentielle est que le champ électrique soit constant. Ceci est une hypothèse forte simplifiant le problème et dont il faudra tenir compte dans les conclusions.

L'équation de la rotation n'est pas facilement solvable analytiquement, mais peut être résolue grâce à une méthode numérique. Dans leur article, [134] *et al.* proposent de l'intégrer avec une méthode intégrée de Cash-Karp-Runge-Kutta d'ordre 4. L'algorithme a été écrit en Matlab et est restitué en Annexe I.

4.9.2 Application aux particules de suie

Dans ce modèle, les paramètres qui modélisent une particule de suie sont sa permittivité électrique et sa masse volumique d'une part, et sa géométrie d'autre part (*cf.* Table 4.5). En ce qui concerne la permittivité électrique des suies, la littérature traite peu de ce sujet pour les suies de type Diesel. Aussi, nous nous rapporterons aux valeurs mesurées pour des matériaux proches. Chen *et al.*, qui étudient des particules aéroportées de l'air ambiant, ont choisi une valeur comprise entre $2.5\epsilon_0$ et $20\epsilon_0$ [87]. La valeur $2.5\epsilon_0$ correspondant à des cendres issues de sites industriels [135], ce qui s'éloigne de nos conditions expérimentales. Enfin, une étude plus générale a été menée sur les propriétés diélectriques du carbone sous différentes formes (graphite, charbon et noir de carbone) par Hotta *et al.* [136]. Ils mesurent une partie réelle de la permittivité comprise entre $5\epsilon_0$ et $10\epsilon_0$ pour le noir de carbone.

Symbole	Valeur	Unité
ρ_p	800	$kg.m^{-3}$
E	$1 - 5 \times 10^6$	$V.m^{-1}$
θ_0	$\pi/4$	rad
ε_p	2 - 20	—
ε_m	1.006	—
ν_f	3.2×10^{-5}	$m^2 s^{-1}$
dt	1×10^{-9}	s
$2a$	93.4 - 236.8	nm
$b = c$	12.5	nm

Table 4.5 – Résumé des constantes du modèle d'électrorotation.

Le champ électrique entre les électrodes peut être grossièrement décrit comme constant (*cf.* Section 4.4) et vaut environ $5 \times 10^6 V/m$ pour une tension de polarisation de 100 V. Toutefois, le champ électrique n'étant pas constant au voisinage des électrodes, il convient de rester prudent quant aux résultats obtenus avec ce modèle.

Enfin, les paramètres géométriques de l'ellipse ont été évalués grâce à l'algorithme de génération des particules de suie. Nous avons choisi des demi petits axes mesurant 12.5 nm quel que soit le diamètre de mobilité des particules, car cela correspond au diamètre des sphérules. Le demi grand axe a été calculé en fonction du diamètre des particules, en mesurant le plus grand écart entre le centre de deux sphérules appartenant à des agrégats générés pour une dimension fractale de $D_f = 1.8$. Les paramètres et les calculs intermédiaires sont résumés dans la Table 4.6.

d_m	d_{ve} (1)	N_{pp} (2)	$2a$ (3)
60	47.3	7	93.4
70	52.9	10	105.8
80	58.3	13	122.4
90	63.5	16	138.2
100	68.6	21	158.2
150	92.1	50	236.8

Table 4.6 – Résumé des paramètres géométriques par diamètre de mobilité. (1) $d_{ve} = N_{pp}^{1/3} d_{pp}$, (2) $N_{pp} = \frac{d_m}{d_{pp}} \left(\frac{1}{1.0361 \log(33.43/D_f)} \right)$, (3) Calculé par Aglogen en faisant la moyenne sur cinq échantillons.

La Figure 4.39 représente la solution de l'équation (4.41). On peut d'abord remarquer que pour la plupart des paramètres étudiés, le temps caractéristique nécessaire à une particule pour s'aligner avec le champ électrique est de l'ordre de $10 \mu s$. Ce temps est environ deux ordres de grandeur inférieur au temps que met une particule pour se déposer sur le capteur, injectée $40 \mu m$ au-dessus des électrodes (*cf.* Figure 4.27).

Le champ électrique joue un rôle important dans l'orientation des sphéroïdes. La Figure 4.39 (a) correspond à des particules de 100 nm et de permittivité $10\varepsilon_0$. Pour la valeur minimale de $E = 1 \times 10^6 V/m$, la rotation la plus lente est opérée. Pour une polarisation à 100 V, cela correspond à une hauteur d'environ $40 \mu m$ des électrodes. Plus la particule sera proche des électrodes, plus son alignement avec le champ électrique sera rapide. Il semble raisonnable de supposer que la particule

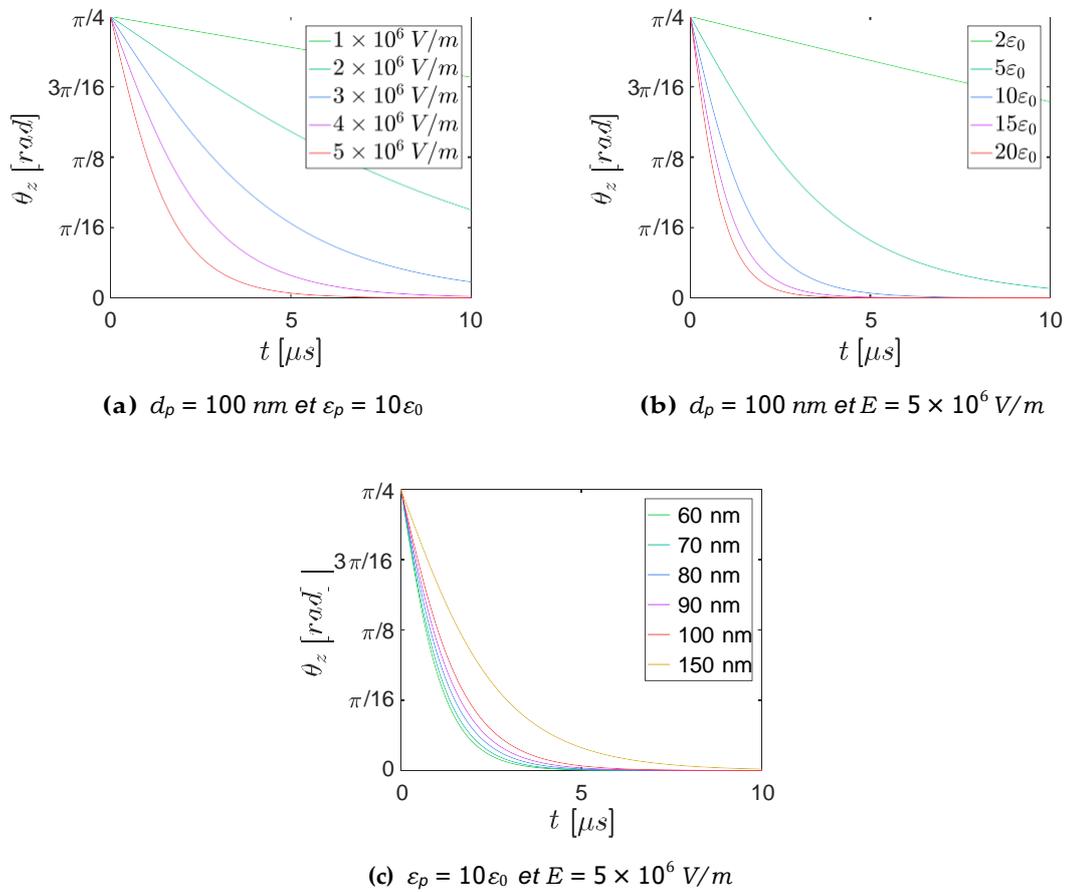


Figure 4.39 – Rotation d'une particule de suie dans le modèle de Winter et al.

sera orientée et parallèle au champ électrique lors de son dépôt sur les électrodes. Il s'agit d'une information importante pour la construction des dendrites. En effet, il est évident que si toutes les particules sont orientées à leur dépôt, les dendrites seront d'autant plus linéaire comme on peut le voir sur les images MEB (*cf.* Section 3.3.6 et en Annexes C).

La permittivité électrique a également une importance dans l'orientation des particules. La Figure 4.39 (b) montre que plus la permittivité des ellipsoïdes est importante, plus la particule atteindra un état d'équilibre rapidement. La permittivité électrique des particules de suie étant relativement peu connue, il est important d'étudier la sensibilité de la solution à ce paramètre. Ici, pour la permittivité minimum $2\varepsilon_0$ le temps caractéristique est particulièrement important et si cette situation est combinée avec un champ électrique faible, l'électrorotation sera trop lente pour orienter la particule avant son dépôt.

Enfin, plus le demi grand axe des ellipsoïdes augmente, plus la rotation de la particule est lente. Néanmoins, ce paramètre n'a pas un impact important et l'ordre de grandeur du temps caractéristique est inchangé. Ceci permet de conclure que dans la gamme de taille considérée ici, le grand axe des particules est toujours aligné avec le champ électrique.

4.10 Conclusion

L'approche numérique présentée dans ce chapitre repose sur l'équation du mouvement des particules de suie au voisinage des électrodes, et a pour objectif d'expliquer les tendances expérimentales liées à la taille des particules. Elles sont modélisées par des sphères. Intrinsèquement, le bilan des forces inclut la force de traînée et la force de Langevin, qui permet de modéliser la diffusion brownienne. Comme les nanoparticules sont chargées et plongées dans un champ électrique, elles sont aussi soumises à la force de Coulomb. Enfin, les propriétés locales du champ électrique donnent lieu à une force appelée diélectrophorèse, qui était jusqu'à présent absente de la littérature portant sur le capteur de suie.

Les champs de force électrique et aérodynamique ont été calculés afin d'estimer les forces agissant sur les particules de suie à chaque instant, et ainsi de prédire leur trajectoire. L'étude du champ de vitesse a été faite à deux échelles : à l'échelle du capteur et à l'échelle des électrodes. La première étude a permis de formaliser des conditions aux limites réalistes pour la seconde, qui sert à calculer directement la force de traînée. L'écoulement a été modélisé par un écoulement de Couette en faisant l'hypothèse qu'une composante de la vitesse était dominante sur les autres. Nous avons vu que cette hypothèse était discutable en fonction de la position sur l'élément sensible. A ce stade, une analyse cinématique a été réalisée et a fourni un premier élément de compréhension sur les observations expérimentales : le dépôt sur les électrodes est influencé par la taille des particules. Les plus massives ont tendance à se déposer davantage dans des zones plus favorables à la construction des dendrites. Néanmoins, le dépôt est asymétrique et une inter-électrode sur quatre bénéficie d'un dépôt suffisant pour la construction des ponts. Or, des ponts sont observés, expérimentalement, sur une inter-électrode sur deux. Ceci peut s'expliquer par le fait que le dépôt varierait au court du temps : l'amorce des premières structures pourrait dévier les particules par les mêmes mécanismes de construction de dendrites. Enfin, il a été montré que la force de diélectrophorèse ne pouvait être négligée pour un diamètre supérieur à 300 nm .

Une étude de la littérature a révélé qu'un élément clef pour simuler la croissance d'une dendrite de suie sur le capteur résistif est le couplage des champs de force avec le dépôt des particules. Ce modèle a donc été utilisé pour simuler la croissance des dendrites de suie sur le capteur. Une étude du modèle a montré que le terme de diélectrophorèse avait une importance, même pour les particules de 100 nm , et ce dans des conditions relativement réalistes, pouvant être rencontrées à la surface du capteur. Comme lors de l'étude cinématique, nous avons vu que la force de diélectrophorèse prend de l'importance avec la taille des particules et modifie profondément la phénoménologie de la construction des dendrites de suie, notamment pour $d_p = 500\text{ nm}$. En effet, il semblerait que seule cette force permette de modéliser des dendrites connectant les deux électrodes entre elles. Nous avons également vu que la diélectrophorèse, couplée à la contribution géométrique des particules avaient un impact sur la vitesse de construction des dendrites. Plus la taille des particules augmente, plus la croissance dendritique est rapide.

Le dépôt préférentiel des plus grosses particules, leur contribution géométrique accrue et leur sensibilité non linéaire à la diélectrophorèse font d'elles les candidates

idéales à la construction de dendrites. Ainsi, ces modèles expliquent chacun, sous un angle différent, les observations selon lesquelles les ponts sont plus rapidement construits par les particules les plus grosses. Si ces mécanismes tendent vers la même conclusion, la pondération de leur importance respective est d'un intérêt certain pour la compréhension fondamentale de la captation. L'état actuel de nos connaissances ne permet toutefois pas d'accéder à cette information.

Pour améliorer le modèle, nous avons principalement étudié l'intégration des particules non sphériques. D'un point de vue aérodynamique, cela se traduit par l'utilisation de la loi de Stokes modifiée par un facteur de forme x . En particulier, la valeur de ce facteur de forme a été étudiée de façon extensive en fonction du nombre de particules primaires et de la dimension fractale. La méthode proposée ici permet d'étudier d'autres paramètres comme la taille des sphérules ou encore le paramètre de recouvrement. Néanmoins, son implémentation doit aller de paire avec l'algorithme de Verlet car la méthode d'Euler ne garantit pas une stabilité numérique suffisante.

D'un point de vue électrostatique, le phénomène d'électrorotation a été étudiée. D'après le modèle de Winter *et al.*, les particules de suie sont en permanence orientées selon les lignes de champs. Or, l'influence de l'orientation sur la force de traînée peut être décrite par une fonction analytique sinusoïdale. Ce couplage électro-aérodynamique peut permettre d'améliorer le modèle des sphères, en particulier pour les particules dont le nombre de particules primaires les en éloigne fortement. Enfin, ces calculs confortent nos observations par microscopie électronique : les ponts peuvent former des structures à la fois fines et linéaires, qui n'existeraient probablement pas si les particules se déposaient avec une orientation aléatoire sur les dendrites.

Conclusion

L'objectif de ce travail de thèse est la compréhension des mécanismes de captation de nanoparticules de suie sur un capteur de particules de type résistif. Sur la base des projets CICLAMEN 1 et 2, menés par l'école des Mines de Saint-Étienne, EFI Automotive, Renault Trucks, Céramique Techniques Industrielles (CTI) et IFP Énergies Nouvelles, l'étude du capteur s'est poursuivie par la thèse de Didier Grondin à l'école des Mines de Saint-Étienne et à l'Institut de Recherche sur la Catalyse et l'Environnement de Lyon. Le présent mémoire restitue un travail mené entre l'école des Mines de Saint-Étienne et IFP Énergies Nouvelles.

Ce travail de recherche a pour objectif d'étudier la sensibilité du capteur résistif à la taille des particules de suie dans la gamme $50 - 150 \text{ nm}$. C'est en effet un jalon indispensable pour évaluer la faisabilité d'une mesure de la concentration en nombre, puisque ce sont les particules dites ultrafines qui y contribuent le plus.

Bilan des approches expérimentales et numériques

Pour atteindre cet objectif sur le plan expérimental, le banc développé lors de la thèse de Didier Grondin [8] destiné à l'étude des capteurs de suie a été enrichi d'un dispositif de classification. Deux méthodes ont été utilisées et reposent sur des principes physiques différents. La première méthode utilisée, la classification électrostatique, a été réalisée par un DMA (*Differential Mobility Analyzer*). Dans cette configuration, les particules de l'aérosol sont classifiées en fonction de leur diamètre de mobilité. Elles ont par conséquent été classifiées en fonction du signe de leur charge électrique et de leur nombre de charge élémentaire. La seconde méthode est la classification aérodynamique, réalisée par un AAC (*Aerodynamic Aerosol Classifier*), qui trie les particules en fonction de leur diamètre aérodynamique. Pour chacune de ces méthodes, le protocole expérimental ne permet toutefois pas d'étudier plusieurs aérosols monodisperses dans les mêmes conditions de concentration, du fait de la forme gaussienne de la fonction de distribution en taille.

Dans les conditions d'essais, le capteur est sensible aux particules de diamètre de mobilité électrique de $d_m = 60 \text{ nm}$ et de diamètre aérodynamique de $d_a = 50 \text{ nm}$. Toutefois, les temps de percolation mesurés se sont avérés particulièrement élevés dans le cas de la classification électrostatique (entre deux et six heures) pour un diamètre de $d_m = 60 \text{ nm}$ et une concentration moyenne très faible de $1.3 \times 10^4 \text{ part./cm}^3$. Dans le cas de la classification aérodynamique, le temps de percolation s'élève à seulement une heure pour $d_a = 50 \text{ nm}$ et une concentration

moyenne quarante fois supérieure ($5.6 \times 10^5 \text{ part./cm}^3$). De plus, des mesures du temps de percolation pour différents diamètres de mobilité électrique et différents diamètres aérodynamiques ont montré que le temps de construction des ponts de suie diminue avec l'augmentation de la taille des particules qui composent l'aérosol. Cette tendance a été vérifiée avec les deux techniques de classification et constitue le principal résultat de l'approche expérimentale. Enfin, le capteur s'est révélé plus sensible aux particules de 150 nm malgré une concentration en nombre très faible ($1.02 \times 10^3 \text{ part./cm}^3$).

En s'inspirant de l'étude proposée par Teike *et al.* [35], un modèle multiphysique en deux dimensions a été développé pour mieux comprendre le rôle de la taille (60 à 500 nm) des particules dans la croissance dendritique des ponts de suie, responsable de la réponse du capteur. La trajectoire des particules est calculée grâce à l'équation du mouvement, qui tient compte de quatre forces :

- la force brownienne,
- la force de traînée,
- la force de Coulomb,
- la force de diélectrophorèse (DEP).

Le calcul des champs électrique et aérodynamique est couplé avec le dépôt des particules sur les électrodes. Les dendrites de suie influencent donc localement l'écoulement et le champ électrique. Afin d'initialiser le champ aérodynamique à l'échelle des électrodes avec des données réalistes, le champ de vitesse a d'abord été calculé à l'échelle du capteur en tenant compte du débit dans le banc d'essai.

Grâce à ce modèle, les zones de dépôt des particules ont été calculées en fonction de leur taille. Plus le diamètre augmente, plus elles se déposent dans une zone propice à la formation des ponts, c'est-à-dire proche du fossé qui sépare deux électrodes de signes opposés. Ceci s'explique par l'augmentation du rapport entre la force de traînée et la force de Coulomb avec le diamètre des particules. De plus, la diélectrophorèse accentue ce mécanisme. Son intensité augmente en effet avec le cube du diamètre des particules. Ceci constitue un premier phénomène permettant d'expliquer la sensibilité du capteur à la taille des particules.

D'après les résultats des simulations, la diélectrophorèse agit aussi comme un mécanisme promouvant la croissance dendritique. Comme sa norme est proportionnelle au gradient du champ électrique, les particules sont naturellement attirées par la pointe des dendrites car il s'agit de la zone de plus haut gradient. En effet, c'est le point qui est le plus proche de l'électrode de signe opposé. Enfin, la norme de la diélectrophorèse ne dépend pas du signe de la charge électrique portée par une particule. Par conséquent, cette force est inconditionnellement attractive pour des particules aéroportées. Contrairement à l'électrophorèse (force de Coulomb seule), ce mécanisme explique mieux la fermeture des ponts, en particulier pour un aérosol où toutes les particules portent des charges de même signe car elles contribuent à la croissance dendritique de part et d'autre du fossé inter-électrodes.

Pour conclure, la force de Coulomb agirait sur l'aérosol à longue portée et la diélectrophorèse, plus intense à courte portée, expliquerait la formation des ponts de suies en raison de l'influence des dendrites qui augmentent localement le gradient du champ électrique. Ces mécanismes varient en intensité avec la taille des particules, et la force diélectrophorétique pourrait, au-delà d'un certain diamètre, être

prédominante sur la force de Coulomb à courte et longue portée.

La conséquence naturelle d'un phénomène qui améliore la captation et qui s'intensifie avec la taille des particules est la détérioration de la sensibilité du capteur aux particules les plus fines au profit de celles qui sont le plus sensibles à la DEP. L'étude numérique présentée dans ce travail permet d'émettre l'hypothèse que si un capteur est exposé à un aérosol polydisperse, les ponts seront préférentiellement formés par les particules les plus grandes. Autrement dit, si le capteur est effectivement sensible aux particules qui contribuent à la concentration en nombre ($< 100 \text{ nm}$), il l'est davantage aux particules qui contribuent à la concentration en masse.

Perspectives

Pour améliorer la compréhension des mécanismes de dépôt, il serait intéressant de réaliser davantage d'essais sous aérosol monodisperse. Même si la concentration varie intrinsèquement avec le diamètre, les essais avec le *Differential Mobility Analyzer* ont montré qu'il devrait être possible de découpler l'impact du diamètre des particules et leur concentration avec une meilleure précision en augmentant le nombre de diamètres étudiés. Toutefois, la classification avec l'*Aerodynamic Aerosol Classifier* est probablement la plus facile à exploiter du fait de la plus haute concentration de l'aérosol et de sa meilleure reproductibilité.

De plus, l'étude de la captation de particules neutres avec une polarisation continue serait un moyen plus direct pour valider expérimentalement l'action de la diélectrophorèse sur les particules de suie au voisinage des électrodes. Pour cela, un piège électrostatique, captant uniquement les particules chargées, pourrait permettre d'obtenir un aérosol de particules de suie électriquement neutres. Un *Aerodynamic Aerosol Classifier* positionné à la sortie du filtre pourrait permettre de générer un aérosol monodisperse de particules de suie neutres. Cette dernière méthode pourrait alors donner des informations sur l'importance de la diélectrophorèse en fonction du diamètre aérodynamique des suies.

L'implémentation de particules non-sphériques permettrait d'améliorer la précision du modèle numérique. Pour cela, un modèle semi-numérique pour le calcul des facteurs de forme dynamique a été proposé. Toutefois, la diélectrophorèse doit aussi bénéficier d'une expression analytique pour une particule non-sphérique. La littérature propose des modèles pour des ellipsoïdes [134], cylindres ou erythrocytes [137], mais les agrégats constituent des systèmes plus complexes qu'il serait intéressant d'étudier davantage et d'implémenter au modèle.

Pour améliorer la méthode numérique, il serait pertinent de l'implémenter en trois dimensions afin de pouvoir tenir compte de la complexité de la surface des électrodes sur lesquelles les dendrites grandissent. Dans ce contexte, une étude extensive de clichés MEB permettrait de réaliser une étude statistique sur la morphologie des ponts, et pourrait valider la méthode numérique par comparaison. Une fois le modèle validé, des calculs d'optimisation pourraient servir d'aide à la conception d'un capteur résistif en dimensionnant l'espace inter-électrodes, la tension de polarisation ou encore les conditions d'écoulement.

Pour finir, l'estimation du dépassement d'un seuil de concentration en nombre

de particules pourrait être atteinte en optimisant la sélectivité en taille de la captation des particules de suies sur les électrodes, grâce au modèle de captation proposé dans ce travail. En effet, le capteur est davantage sensible aux particules de plus grand diamètre. Une nouvelle conception des pistes, une optimisation de la polarisation et de l'aérodynamique du capteur pourraient mener à cet objectif. D'autres technologies pourraient aussi être placées en amont du capteur résistif pour éliminer les grosses particules de l'aérosol (filtre passe-bas), comme dispositifs microfluidiques basés sur l'inertie des particules. Certains d'entre eux sont notamment adaptés pour séparer les particules supérieures à 500 nm [138, 139]. Toutefois, la principale difficulté réside dans l'intégration d'un tel système à la ligne d'échappement, qui est un environnement entre autres soumis aux vibrations mécaniques, à une température élevée et dont les gaz ont une teneur élevée en eau.

Bibliographie

- [1] World Meteorological Organisation and United Nations Environment Program. Climate change 2007 : the physical science basis : Summary for policymakers. <http://www.slvwd.com/agendas/Full/2007/06-07-07/Item%2010b.pdf>.
- [2] G. Plassat S. Barbusse. *Les particules de combustion automobile et leurs dispositifs d'élimination*. Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie, 2005. https://www.ademe.fr/sites/default/files/assets/documents/35160_particules.pdf.
- [3] R. W. Atkinson, H. R. Anderson, J. Sunyer, J. Ayres, M. Baccini, J. M. Vonk, A. Boumghar, F. Forastiere, B. Forsberg, G. Touloumi, J. Schwartz, and K. Katsouyanni. Acute effects of particulate air pollution on respiratory admissions : Results from apha 2 project. *American Journal of respiratory and critical care medicine*, 164 :1860–1866, 2001. <https://doi.org/10.1164/ajrccm.164.10.2010138>.
- [4] B. Brunekreef and S. T. Holgate. Air pollution and health. *The Lancet*, 360(9341) :1233–1242, 2002. [https://doi.org/10.1016/S0140-6736\(02\)11274-8](https://doi.org/10.1016/S0140-6736(02)11274-8).
- [5] J. Heyder. Deposition of inhaled particles in the human respiratory tract and consequences for regional targeting in respiratory drug delivery. *Proc Am Thorac Soc*, 1(4) :315–320, 2004. <https://doi.org/10.1513/pats.200409-046TA>.
- [6] J. Quaas. The soot factor. *Nature*, 471 :456, 2011. <https://doi.org/10.1038/471456a>.
- [7] Delphi Technologies. Worldwide emissions standards : Passenger cars and light duty vehicles, 2019. <https://www.delphi.com/innovations>.
- [8] D. Grondin. *Ph. D., Développement d'un capteur de suie pour application automobile : Etude des paramètres clés affectant sa réponse*. PhD thesis, Ecole des Mines de Saint-Etienne, Saint-Etienne, 2017.
- [9] L. Serveau, N. Taïeb, J.-P. Chang, J. Vincent, N. Allemand, J. Boutang. Inventaire des émissions de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre en France : Séries sectorielles et analyses étendues, 2015. <https://www.actu-environnement.com/media/pdf/news-25248-secten-ges.pdf>.

- [10] F. Collin. *Détermination des signatures granulométriques et chimiques de particules prélevées à l'échappement de moteurs Diesel et en atmosphère urbaine*. Thèse ademe - cnrs-lmr / psa peugeot citroën, 2000.
- [11] The national academies of sciences, engineering, medicine website. <https://www.nap.edu>.
- [12] A. Sassi, E. Rohart, and G. Belot. Post-traitement des émissions polluantes des moteurs thermiques à combustion interne- moteurs à allumage par compression. *Techniques de l'ingénieur*, 2011.
- [13] Z. Gu and R. A. Schill. Novel quasi-electrostatic air filter : A single-particle study. *Journal of Electrostatics*, 39(3) :203–230, 1997. [https://doi.org/10.1016/S0304-3886\(97\)00006-5](https://doi.org/10.1016/S0304-3886(97)00006-5).
- [14] R. Boichot. *Filtration des particules issues des moteurs Diesel par matrices fibreuses plongées dans un champ électrique*. PhD thesis, Université de Savoie, Chambéry, 2005.
- [15] K. R. Parker. *Applied Electrostatic Precipitation*. Blackie Academic & Professional, 2012.
- [16] M. Masoudi and A. G. Sappok. Soot (pm) sensors, 2014. https://dieselnet.com/tech/sensors_soot.php.
- [17] T. Kamimoto. A review of soot sensors considered for on-board diagnostics application. *International Journal of Engine Research*, 2016. <https://doi.org/10.1177/1468087416678499>.
- [18] D. Liu, Z. Qiang, J. Jingkun, and C. Da-Ren. Performance calibration of low-cost and portable particular matter (pm) sensors. *Journal of Aerosol Science*, 112 :1–10, 2017. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2017.05.011>.
- [19] D. Bilby, D. J. Kubinski, and M. M. Maricq. Current amplification in an electrostatic trap by soot dendrite growth and fragmentation : Application to soot sensors. *Journal of Aerosol Science*, 98 :41–58, 2016. <http://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2016.03.003>.
- [20] L. Ntziachristos, P. Fragkiadoulakis, Z. Samaras, K. Janka, and J. Tikkanen. Exhaust particle sensor for obd application. In *SAE 2011 World Congress & Exhibition*, SAE Technical Paper Series. SAE International400 Commonwealth Drive, Warrendale, PA, United States, 2011. <https://doi.org/10.4271/2011-01-0626>.
- [21] A. Kondo, S. Yokoi, T. Sakurai, S. Nishikawa, T. Egami, M. Tokuda, and T. Sakuma. New particulate matter sensor for on board diagnosis. *SAE International Journal of Engines*, 4(1) :117–125, 2011. <https://doi.org/10.4271/2011-01-0302>.
- [22] Y. Wang, J. Li, H. Jing, Q. Zhang, J. Jiang, and P. Biswas. Laboratory evaluation and calibration of three low-cost particle sensors for particulate matter measurement. *Aerosol Science and Technology*, 49 :1063–1077, 2015. <https://doi.org/10.1080/02786826.2015.1100710>.

- [23] D. A. Lundgren and D. W. Cooper. Effect of humidity on light-scattering methods of measuring particle concentration. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 19(4) :243–247, 2012. <https://doi.org/10.1080/00022470.1969.10466482>.
- [24] A. Di Antonio, O. A. M. Popoola, B. Ouyang, J. Saffell, and R. L. Jones. Developing a relative humidity correction for low-cost sensors measuring ambient particulate matter. *Sensors (Basel, Switzerland)*, 18(9) :<https://doi.org/10.3390/s18092790>, 2018. 2790.
- [25] S. Grall. *Microcapteurs de particules à base de micropoutres pour le contrôle de la qualité de l'air dans un véhicule automobile*. PhD thesis, Université de Bordeaux, Bordeaux, 2019.
- [26] H. S. Wasisto, S. Merzsch, A. Waag, E. Uhde, T. Salthammer, and E. Peiner. Airborne engineered nanoparticle mass sensor based on a silicon resonant cantilever. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 180 :77–89, 2013. <https://doi.org/10.1016/j.snb.2012.04.003>.
- [27] J. P. Black, A. Elium, R. M. White, M. G. Apte, L. A. Gundel, and R. Cambie. 6d-2 mems-enabled miniaturized particulate matter monitor employing 1.6 ghz aluminum nitride thin-film bulk acoustic wave resonator (fbar) and thermophoretic precipitator. In *2007 IEEE Ultrasonics Symposium Proceedings*, pages 476–479. IEEE, 2007. <https://doi.org/10.1109/ULTSYM.2007.128>.
- [28] J. W. Lee S., S. H. Lee, and J. Jang. Numerical analysis on the electrostatic capture of airborne nanoparticles and viruses in a homemade particle concentrator without a unipolar charger. *Journal of Electrostatics*, 70(2) :192–200, 2012. <https://doi.org/10.1016/j.elstat.2011.12.005>.
- [29] N. Duncan, Z. Sternovsky, E. Grün, S. Auer, M. Horanyi, K. Drake, J. Xie, G. Lawrence, D. Hansen, and H. Le. The electrostatic lunar dust analyzer (elda) for the detection and trajectory measurement of slow-moving dust particles from the lunar surface. *Planetary and Space Science*, 59(13) :1446–1454, 2011. <https://doi.org/10.1016/j.pss.2011.06.002>.
- [30] D. Grondin, A. Westermann, P. Breuil, J.-P. Viricelle, and P. Vernoux. Influence of key parameters on the response of a resistive soot sensor. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 236 :1036–1043, 2016.
- [31] C.-N. Millet, H. Abassi, J. Lavy. *Projet ciclamen 2 : Capteur de particules pour échappement moteur*.
- [32] T. Ochs, H. Schittenhelm, A. Genssle, and B. Kamp. Particulate matter sensor for on board diagnostics (obd) of diesel particulate filters (dpf). *SAE International Journal of Fuels and Lubricants*, 3(1) :61–69, 2010. <https://doi.org/10.4271/2010-01-0307>.
- [33] H. Husted, G. Roth, S. Nelson, L. Hocken, G. Fulks, and D. Racine. Sensing of particulate matter for on-board diagnosis of particulate filters. *SAE International Journal of Engines*, 5(2) :235–247, 2012. <https://doi.org/10.4271/2012-01-0372>.

- [34] O. Brunel, F. Duault, J. Lavy, Y. Creff, and B. Youssef. Smart soot sensor for particulate filter obd. *SAE International Journal of Passenger Cars - Electronic and Electrical Systems*, 6(1) :307–327, 2013. <https://doi.org/10.4271/2013-01-1334>.
- [35] G. Teike, M. Dietzel, B. Michaelis, H. Schomburg, and M. Sommerfeld. Multiscale lattice–boltzmann approach for electrophoretic particle deposition. *Aerosol Science and Technology*, 46(4) :451–464, 2012. <https://doi.org/10.1080/02786826.2011.634451>.
- [36] A. Malik, H. Abdulhamid, J. Pagels, J. Rissler, M. Lindskog, P. Nilsson, R. Bjorklund, P. Jozsa, J. Visser, A. Spetz, and M. Sanati. A potential soot mass determination method from resistivity measurement of thermophoretically deposited soot. *Aerosol Science and Technology*, 45(2) :284–294, 2011. <https://doi.org/10.1080/02786826.2010.533214>.
- [37] G. Hagen, C. Spannauer, M. Feulner, J. Kita, A. Müller, and R. Moos. Conductometric soot sensors : Internally caused thermophoresis as an important undesired side effect. *Sensors (Basel, Switzerland)*, 18(10), 2018. <https://doi.org/10.3390/s18103531>.
- [38] H. Bockhorn. *Soot Formation in Combustion : Mechanisms and Models*, volume 59 of *Springer Series in Chemical Physics*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1994.
- [39] F. Douce. *Etude de la formation des particules de suies à partir de constituants représentatifs du gazole*. PhD thesis, Université d’Orléans, 2001.
- [40] H. Bockhorn, F. Fetting, G. Wannemacher, and H. W. Wenz. Optical studies of soot particle growth in hydrocarbon oxygen flames. *Symposium (International) on Combustion*, 19(1) :1413–1420, 1982. [https://doi.org/10.1016/S0082-0784\(82\)80318-4](https://doi.org/10.1016/S0082-0784(82)80318-4).
- [41] M. Frenklach. Reaction mechanism of soot formation in flames. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 4(11) :2028–2037, 2002. <https://doi.org/10.1039/b110045a>.
- [42] A. D’Alessio, A. D’Anna, P. Minutolo, L. A. Sgro, and A. Violi. On the relevance of surface growth in soot formation in premixed flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28(2) :2547–2554, 2000. [https://doi.org/10.1016/S0082-0784\(00\)80671-2](https://doi.org/10.1016/S0082-0784(00)80671-2).
- [43] O. Mathieu. *Étude cinétique de la formation des particules de suie dans les conditions de fonctionnement des moteurs automobile*. PhD thesis, Université d’Orléans, 2006.
- [44] J. Lahaye and G. Prado. *Soot in combustion systems and its toxic properties*. Material science. Springer, 1983. <https://link.springer.com/content/pdf/10.1007%2F978-1-4684-4463-6.pdf>.
- [45] H. Richter and J. B. Howard. Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot—a review of chemical reaction pathways. *Progress in*

- Energy and Combustion Science*, 26(4-6) :565–608, 2000. [https://doi.org/10.1016/S0360-1285\(00\)00009-5](https://doi.org/10.1016/S0360-1285(00)00009-5).
- [46] S. K. Friedlander and C. S. Wang. The self-preserving particle size distribution for coagulation by brownian motion. *Journal of colloid and interface science*, 22 :126–132, 1966.
- [47] P. S. Mehta and S. Das. A correlation for soot concentration in diesel exhaust based on fuel-air mixing parameters. *Fuel*, 71 :689–692, 1992.
- [48] I. M. Kennedy. Models of soot formation and oxidation. *Progress in Energy and Combustion Science*, 23(2) :95–132, 1997. [https://doi.org/10.1016/S0360-1285\(97\)00007-5](https://doi.org/10.1016/S0360-1285(97)00007-5).
- [49] P. A. Tesner, T. D. Smegiriova, and V. G. Knorre. Kinetics of dispersed carbon formation. *Combustion and Flame*, 17(2) :253–260, 1971. [https://doi.org/10.1016/S0010-2180\(71\)80168-2](https://doi.org/10.1016/S0010-2180(71)80168-2).
- [50] B. B. Mandelbrot. *The fractal geometry of nature*. Freeman, San Francisco, 1982.
- [51] M. Zurita-Gotor and D. E. Rosner. Effective diameters for collisions of fractal-like aggregates : Recommendations for improved aerosol coagulation frequency predictions. *Journal of colloid and interface science*, 255(1) :10–26, 2002. <https://doi.org/10.1006/jcis.2002.8634>.
- [52] K. Park, D. B. Kittelson, and P. H. McMurry. Structural properties of diesel exhaust particles measured by tem : relationships to particle mass and mobility. *Aerosol Science and Technology*, (38) :881–889, 2004. <https://doi.org/10.1080/027868290505189>.
- [53] K. Park, F. Cao, D. B. Kittelson, and P. H. McMurry. Relationship between particle mass and mobility for diesel exhaust particles. *Environmental Science & Technology*, 37(3) :577–583, 2003.
- [54] K. Sachdeva and A. K. Attri. Morphological characterization of carbonaceous aggregates in soot and free fall aerosol samples. *Atmospheric Environment*, 42(5) :1025–1034, 2008. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.10.002>.
- [55] J. Yon, A. Bescond, and F.-X. Ouf. A simple semi-empirical model for effective density measurements of fractal aggregates. *Journal of Aerosol Science*, 87 :28–37, 2015. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2015.05.003>.
- [56] F.-X. Ouf, J. Yon, P. Ausset, A. Coppalle, and M. Maillé. Influence of sampling and storage protocol on fractal morphology of soot studied by transmission electron microscopy. *Aerosol Science and Technology*, 44(11) :1005–1017, 2010. <https://doi.org/10.1080/02786826.2010.507228>.
- [57] M. M. Maricq. Chemical characterization of particulate emissions from diesel engines : A review. *Journal of Aerosol Science*, 38(11) :1079–1118, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2007.08.001>.

- [58] B. Giechaskiel, M. Maricq, L. Ntziachristos, C. Dardiotis, X. Wang, H. Axmann, A. Bergmann, and W. Schindler. Review of motor vehicle particulate emissions sampling and measurement : From smoke and filter mass to particle number. *Journal of Aerosol Science*, 67 :48–86, 2014. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2013.09.003>.
- [59] H. Burtscher. Physical characterization of particulate emissions from diesel engines : A review. *Journal of Aerosol Science*, 36(7) :896–932, 2005. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2004.12.001>.
- [60] K. Lombaert. *Composition et évolution des espèces particulières émises à l'échappement d'un moteur Diesel en fonction des paramètres moteurs et de la nature du carburant*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris, 2002.
- [61] D. B. Kittelson. Engines and nanoparticles. *Journal of Aerosol Science*, 29(5-6) :575–588, 1998. [https://doi.org/10.1016/S0021-8502\(97\)10037-4](https://doi.org/10.1016/S0021-8502(97)10037-4).
- [62] A. Petzold, J. A. Ogren, M. Fiebig, P. Laj, S. M. Li, U. Baltensperger, T. Holzer-Popp, S. Kinne, G. Pappalardo, N. Sugimoto, C. Wehrli, A. Wiedensohler, and X. Y. Zhang. Recommendations for reporting black carbon measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(16) :8365–8379, 2013. <https://doi.org/10.5194/acp-13-8365-2013>.
- [63] S. E. Schwartz, E. R. Lewis. Interactive comment on log are black carbon and soot the same? by p. r. buseck et al. : Disagreement on proposed nomenclature. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012.
- [64] L. J. Dunne. Electrical magnetic and structural properties of soots. *Condens. Matter*, 8 :2127–2141, 1996. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/8/13/005>.
- [65] B. Grob, J. Schmid, N. P. Ivleva, and R. Niessner. Conductivity for soot sensing : possibilities and limitations. *Analytical chemistry*, 84(8) :3586–3592, 2012. <https://doi.org/10.1021/ac203152z>.
- [66] D. Pantea, H. Darmstadt, S. Kaliaguine, and C. Roy. Electrical conductivity of conductive carbon blacks : influence of surface chemistry and topology. *Applied Surface Science*, 217(1) :181–193, 2003. [https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(03\)00550-6](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(03)00550-6).
- [67] D. B. Kittelson, D. Y. H. Pui, and K. C. Moon. Electrostatic collection of diesel particles. *SAE Technical Paper*, 1986. <https://www.jstor.org/stable/44721637>.
- [68] K.-C. Moon. *Charging mechanism of submicron diesel particles*. PhD thesis, University of Minnesota, Saint Paul, 1984.
- [69] M. M. Maricq. On the electrical charge of motor vehicle exhaust particles. *Journal of Aerosol Science*, 37(7) :858–874, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2005.08.003>.

- [70] S. H. Kim, K. S. Woo, B. Y. H. Liu, and M. R. Zachariah. Method of measuring charge distribution of nanosized aerosols. *Journal of colloid and interface science*, 282(1) :46–57, 2005.
- [71] M. M. Maricq. A comparison of soot size and charge distributions from ethane, ethylene, acetylene, and benzene/ethylene premixed flames. *Combustion and Flame*, 144(4) :730–743, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2005.09.007>.
- [72] R. Gopalakrishnan, M. J. Meredith, C. Larriba-Andaluz, and C. Hogan Jr. Brownian dynamics determination of the bipolar steady state charge distribution on spheres and non-spheres in the transition regime. *Journal of Aerosol Science*, 63 :126–145, 2013.
- [73] P. Fragkiadoulakis, D. Mertzis, S. Geivanidis, and Z. Samaras, editors. *Prediction of resistive soot sensor behavior in diesel exhaust via 3D simulation of soot deposition*, 2015.
- [74] Brugière Edouard. *Le spectromètre thermophorétique circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale*. PhD thesis, Institut National de Sciences Appliquées de Rouen, 2012.
- [75] E. Cunningham. On the velocity of steady fall of spherical particles through fluid medium. *Phil. Mag.*, 5 :357–365, 1903. <https://doi.org/10.1098/rspa.1910.0024>.
- [76] M. D. Allen and O. G. Raabe. Slip correction measurements of spherical solid aerosol particles in an improved millikan apparatus. *Aerosol Science and Technology*, 4 :269–286, 1985. <https://doi.org/10.1080/02786828508959055>.
- [77] P. F. DeCarlo, J. G. Slowik, D. R. Worsnop, P. Davidovits, and L. J. Jimenez. Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. part 1 : Theory. *Aerosol Science and Technology*, 38(12) :1185–1205, 2004. <https://doi.org/10.1080/027868290903907>.
- [78] N. A. Fuchs. *The Mechanics of Aerosols*. Pergamon, New York, 1964.
- [79] W. C. Hinds. *Aerosol technology : Properties, behaviour, and measurement of airborne particles*. Wiley, New York and Chichester, 2nd ed. edition, 1999.
- [80] B. E. Dahneke. Slip correction factors for nonspherical bodies iii : The form of the general law. *Journal of Aerosol Science*, 4(2) :163–170, 1973. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(73\)90067-0](https://doi.org/10.1016/0021-8502(73)90067-0).
- [81] Y. S. Cheng. Drag force on non-spherical aerosol particles. *Chemical Engineering Communications*, 108(1) :201–223, 1991. <https://doi.org/10.1080/00986449108910959>.
- [82] R. J. Hunter. *Foundations of Colloid Science*. Oxford University Press, 1989.

- [83] P. H. McMurry, X. Wang, K. Park, and K. Ehara. The relationship between mass and mobility for atmospheric particles : A new technique for measuring particle density. *Aerosol Science and Technology*, 36(2) :227–238, 2002. <https://doi.org/10.1080/027868202753504083>.
- [84] R. Pethig. Review article-dielectrophoresis : status of the theory, technology, and applications. *Biomicrofluidics*, 4(2), 2010. <https://doi.org/10.1063/1.3456626>.
- [85] A. R. Minerick. Dc dielectrophoresis in lab-on-a-chip devices. In Dongqing Li, editor, *Encyclopedia of Microfluidics and Nanofluidics*, pages 1–9. Springer US, Boston, MA, 2013. https://doi.org/10.1007/978-3-642-27758-0_294-5.
- [86] S. K. Srivastava, A. Gencoglu, and A. R. Minerick. Dc insulator dielectrophoretic applications in microdevice technology : a review. *Analytical and bioanalytical chemistry*, 399(1) :301–321, 2011. <https://doi.org/10.1007/s00216-010-4222-6>.
- [87] Z. Chen and X. Shen. Study on dielectrophoretic deposition of airborne particles in a vertical micro channel. *Building and Environment*, 45(4) :968–975, 2010.
- [88] B. H. Lapizco-Encinas, B. A. Simmons, E. B. Cummings, and Y. Fintschenko. Dielectrophoretic concentration and separation of live and dead bacteria in an array of insulators. *Analytical chemistry*, 76(6) :1571–1579, 2004. <https://doi.org/10.1021/ac034804j>.
- [89] M. Abraham. *Classical electricity and magnetism*. Hafner, New York, english translation of 8th german edition edition, 1932.
- [90] H. S. Hatfield. Dielectric separation : a new method for the treatment of ores. *Mining and Metallurgy Inst.*, 33 :335, 1924.
- [91] H. A. Pohl. *Dielectrophoresis : The behavior of neutral matter in nonuniform electric fields*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom, 1978.
- [92] F. J. Romay, Y. H. Liu, and S.-J. Chae. Experimental study of electrostatic capture mechanisms in commercial electret filters. *Aerosol Science and Technology*, 28 :224–234, 1998. <https://doi.org/10.1080/02786829808965523>.
- [93] M. Kerner, K. Schmidt, A. Hellmann, S. Schumacher, M. Pitz, C. Asbach, S. Ripperger, and S. Antonyuk. Numerical and experimental study of sub-micron aerosol deposition in electret microfiber nonwovens. *Journal of Aerosol Science*, 122 :32–44, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2018.05.004>.
- [94] Nathalie Montassier. Etude du dépôt par thermophorèse dans un écoulement laminaire. https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/22/023/22023034.pdf?r=1&r=1.
- [95] L. Waldmann and K. H. Schmitt. *Thermophoresis and diffusio-phoresis of aerosols : In aerosol science*. Academic Press, London, 1966.

- [96] L. Talbot, R. K. Cheng, R. W. Schefer, and D. R. Willis. Thermophoresis of particles in a heated boundary layer. *Journal of Fluid Mechanics*, 101(04) :737, 1980. <https://doi.org/10.1017/S0022112080001905>.
- [97] C.-J. Tsai and H.-C. Lu. Design and evaluation of a plate-to-plate thermophoretic precipitator. *Aerosol Science and Technology*, 22(2) :172–180, 1995. <https://doi.org/10.1080/02786829408959738>.
- [98] E. Brugière, F. Gensdarmes, F.-X. Ouf, J. Yon, and A. Coppalle. Increase in thermophoretic velocity of carbon aggregates as a function of particle size. *Journal of Aerosol Science*, 76 :87–97, 2014. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2014.06.007>.
- [99] R. Sturm. Theoretical models for dynamic shape factors and lung deposition of small particle aggregates originating from combustion processes. *Zeitschrift für medizinische Physik*, 20(3) :226–234, 2010. <https://doi.org/10.1016/j.zemedi.2010.04.001>.
- [100] M. Mansour. Hydrodynamics of diesel particulate filter. *SAE International Journal of Engines*, 2002. <https://www.jstor.org/stable/44734534>.
- [101] M. Feulner, G. Hagen, A. Müller, A. Schott, C. Zollner, D. Bruggemann, and R. Moos. Conductometric sensor for soot mass flow detection in exhausts of internal combustion engines. *Sensors (Basel, Switzerland)*, 15(11) :28796–28806, 2015. <https://doi.org/10.3390/s151128796>.
- [102] S. Binnig, S. Fuchs, C. A. Robles Collantes, and H.-R. Volpp. Exhaust gas condensate – formation, characterization and influence on platinum measuring electrodes in diesel vehicles. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 242 :1251–1258, 2017. <https://doi.org/10.1016/j.snb.2016.09.082>.
- [103] Jing Ltd. Cast principle, 2009. <http://www.sootgenerator.com>.
- [104] A. Mamakos, I. Khalek, R. Giannelli, and M. Spears. Characterization of combustion aerosol produced by a mini-cast and treated in a catalytic stripper. *Aerosol Science and Technology*, 47(8) :927–936, 2013. <https://doi.org/10.1080/02786826.2013.802762>.
- [105] L. Durdina, P. Lobo, M. B. Trueblood, E. Black, S. Achterberg, D. E. Hagen, B. T. Brem, and J. Wang. Response of real-time black carbon mass instruments to mini-cast soot. *Aerosol Science and Technology*, 50(9) :906–918, 2016. <https://doi.org/10.1080/02786826.2016.1204423>.
- [106] R. Moore, L. D. Ziemba, D. Dutcher, A. J. Beyersdorf, K. Chan, S. Crumeyrolle, T. M. Raymond, K. L. Thornhill, E. L. Winstead, and B. E. Anderson. Mapping the operation of the miniature combustion aerosol standard (mini-cast) soot generator. *Aerosol Science and Technology*, 48(5) :467–479, 2014. <https://doi.org/10.1080/02786826.2014.890694>.
- [107] L. Mueller, G. Jakobi, J. Orasche, E. Karg, M. Sklorz, G. Abbaszade, B. Weggler, L. Jing, J. Schnelle-Kreis, and R. Zimmermann. Online determination of polycyclic aromatic hydrocarbon formation from a flame soot generator.

- Analytical and bioanalytical chemistry*, 407(20) :5911–5922, 2015. <https://doi.org/10.1007/s00216-015-8549-x>.
- [108] Particle Technology Palas. Product lines, palas: Series vkl/khg/dc10000, 2018. <https://www.palas.de/en/product/vkl10>.
- [109] P. Intra and N. Tippayawong. An overview of differential mobility analyzers for size classification of nanometer-sized aerosol particles. *Songklanakarin J. Sci. Technol.*, 30(2) :243–256, 2008. <http://repository.rmutl.ac.th/handle/123456789/153>.
- [110] E. O. Knutson and K. T. Whitby. Aerosol classification by electric mobility : apparatus, theory and application. *Aerosol Science and Technology*, 6 :443–451, 1975. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(75\)90060-9](https://doi.org/10.1016/0021-8502(75)90060-9).
- [111] Cambustion. *Aerodynamic Aerosol Classifier AAC User manual : Version 1.10, User Interface Software v1.100, PC Tools v1.002*. Cambridge, United Kingdom, 2016.
- [112] Centre for Atmospheric Science. Condensation particle counters. <http://www.cas.manchester.ac.uk>.
- [113] P. G. Gormley and M. Kennedy. Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube. *Proceedings of the Royal Irish Academy. Section A : Mathematical and Physical Sciences*, pages 163–169, 1948. <https://www.jstor.org/stable/20488498>.
- [114] G. Hagen, M. Feulner, R. Werner, M. Schubert, A. Müller, G. Rieß, D. Brüggemann, and R. Moos. Capacitive soot sensor for diesel exhausts. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 236 :1020–1027, 2016. <https://doi.org/10.1016/j.snb.2016.05.006>.
- [115] P. Fragkiadoulakis, S. Geivanidis, and Z. Samaras. Modeling a resistive soot sensor by particle deposition mechanisms. *Journal of Aerosol Science*, 123 :76–90, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2018.06.005>.
- [116] A. Sediako and C. Soong and J.-Y. Howe and M. R. Kholghy and M. J. Thomson. Real-time observation of soot aggregate oxidation in an environmental transmission electron microscope. *Proceedings of the Combustion Institute*, 36 :841–851, 2015. <https://doi.org/10.1016/j.proci.2016.07.048>.
- [117] C. Huguet. *Étude cinétique de la combustion des suies Diesel : Application à la modélisation de la régénération du filtre à particules*. PhD thesis, Université d'Orléans, Orléans, 2005.
- [118] M. N. Ess, D. Ferry, E. D. Kireeva, R. Niessner, F.-X. Ouf, and N. P. Ivleva. In situ raman microspectroscopic analysis of soot samples with different organic carbon content : Structural changes during heating. *Carbon*, 105 :572–585, 2016. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2016.04.056>.
- [119] Nist/sematech e-handbook of statistical methods : Two-sample t-test for equal means. <https://www.itl.nist.gov/div898/handbook/eda/section3/eda353.htm>.

- [120] C. K. Batchelor. *An introduction to fluid dynamics*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom, 1967.
- [121] A.L. Kupershtokh, D. A. Medvedev, and D. I. Karpov. On equations of state in a lattice boltzmann method. *Computers & Mathematics with Applications*, 58(5) :965–974, 2009. <https://doi.org/10.1016/j.camwa.2009.02.024>.
- [122] Palabos. Palabos website. http://wiki.palabos.org/numerics:matlab_samples.
- [123] J. Latt, B. Chopard, O. Malaspinas, M. Deville, and A. Michler. Straight velocity boundaries in the lattice boltzmann method. *Physical review. E, Statistical, nonlinear, and soft matter physics*, 77(5) :056703, 2008. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.77.056703>.
- [124] Q. Zou and X. He. On pressure and velocity flow boundary conditions for the lattice boltzmann bgk model. <http://arxiv.org/pdf/comp-gas/9508001v1>.
- [125] T. Inamuro, M. Yoshino, and F. Ogino. A non-slip boundary condition for lattice boltzmann simulations. *Physics of Fluids*, 7(12) :2928–2930, 1995. <http://arxiv.org/pdf/comp-gas/9508002v3>.
- [126] D. Meeker. Finite elements method magnetics website, 2019. <http://www.femm.info/wiki/HomePage>.
- [127] F. Jędrzejewski. *Introduction aux méthodes numériques : Deuxième édition*. Springer, Paris, 2001.
- [128] L. Verlet. Computer experiments on classical fluids. i. thermodynamical properties of lennard-jones molecules. *Physical Review*, 159(1) :98–103, 1967. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.159.98>.
- [129] J. Roussel. *La méthode de Verlet*. 2015. <https://femto-physique.fr/omp/pdf/verlet.pdf>.
- [130] B. Ranarivelo. Modélisation des forces électrophorétiques intervenant dans le processus de captation des particules issues des gaz d'échappements des moteurs thermiques.
- [131] R. Iosifidis. A moment in the life of a resistive soot sensor : Analysis and synthesis of forces applied for particle tracking model development. <http://ikee.lib.auth.gr/record/295557/files/?ln=fr>.
- [132] C. Binder, C. Feichtinger, H.-J. Schmid, N. Thürey, W. Peukert, and U. Råde. Simulation of the hydrodynamic drag of aggregated particles. *Journal of colloid and interface science*, 301(1) :155–167, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2006.04.045>.
- [133] C. M. Sorensen. The mobility of fractal aggregates : A review. *Aerosol Science and Technology*, 45(7) :765–779, 2011. <https://doi.org/10.1080/02786826.2011.560909>.

- [134] W. T. Winter and M. E. Welland. Dielectrophoresis of non-spherical particles. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 42(4) :045501, 2009. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/42/4/045501>.
- [135] Y. C. Ahn and J. K. Lee. Physical, chemical, and electrical analysis of aerosol particles generated from industrial plants. *Journal of Aerosol Science*, 37(2) :187–202, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2005.04.008>.
- [136] M. Hotta, M. Hayashi, M. T. Lanagan, D. K. Agrawal, and K. Nagata. Complex permittivity of graphite, carbon black and coal powders in the ranges of x-band frequencies (8.2 to 12.4 ghz) and between 1 and 10 ghz. *ISIJ International*, 51(11) :1766–1772, 2011. <https://doi.org/10.2355/isijinternational.51.1766>.
- [137] N. G. Green and T. B. Jones. Numerical determination of the effective moments of non-spherical particles. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 40(1) :78–85, 2007. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/1/S12>.
- [138] A. Schaap, W. C. Chu, and B. Stoeber. Transport of airborne particles in straight and curved microchannels. *Physics of Fluids*, 24, 2012. <https://doi.org/10.1063/1.4742900>.
- [139] S. C. Hong, J. S. Kang, J. E. Lee, S. S. Kim, and J. H. Jung. Continuous aerosol size separator using inertial microfluidics and its application to airborne bacteria and viruses. *Lab on a chip*, 15 :1889–1897, 2015. <https://doi.org/10.1039/C5LC00079C>.
- [140] J. R. Cash and A. H. Karp. A variable order runge-kutta method for initial value problems with rapidly varying right-hand sides. *ACM Transaction on Mathematical Software*, 16(3) :201–222, 1990. <https://doi.org/10.1145/79505.79507>.
- [141] T. B. Jones. *Electromechanics of particles*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom, 2005.
- [142] G. B. Jeffery. The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid. *Proc. R. Soc. A*, (102) :161–179, 1922. <https://doi.org/10.1098/rspa.1922.0078>.
- [143] M.-L. Chan, K. N. Mullins, and A. Williams. Low temperature oxidation of soot. *Fuel*, 66 :1694–1698, 1987. [https://doi.org/10.1016/0016-2361\(87\)90365-6](https://doi.org/10.1016/0016-2361(87)90365-6).

Annexe A

Matrice des essais

La Table A.1 restitue la matrice des essais qui ont été réalisés dans le cadre de la classification électrostatique. Quatre diamètres de mobilité électrostatique ont été considérés et une emphase a été mise sur les tensions de polarisation 50 V et 70 V. Les concentrations sont restituées sur la Figure A.1.

ID	date	capteur	d_m	V_{pol}	t_{perc}	C
[–]	[–]	[–]	[nm]	[V]	[s]	[10 ⁴ part./cm ³]
1.14	01/08/2017	capteur 1	60	50	6946	1.46
1.34	10/10/2017	capteur 1	60	50	14335	1.04
1.38	16/10/2017	capteur 2	60	50	20975	0.93
1.23	24/08/2017	capteur 1	60	70	15441	1.43
1.17	02/08/2017	capteur 1	60	100	7604	1.43
1.7	24/07/2017	capteur 1	70	30	5671	1.76
1.8	25/07/2017	capteur 1	70	30	4930	1.80
1.30	03/10/2017	capteur 1	70	30	4705	1.29
1.5	21/07/2017	capteur 1	70	50	6781	1.89
1.6	21/07/2017	capteur 1	70	50	4345	1.89
1.31	04/10/2017	capteur 1	70	50	9127	1.29
1.10	26/07/2017	capteur 1	70	70	5687	1.71
1.25	31/08/2017	capteur 1	70	70	11248	1.47
1.9	26/07/2017	capteur 1	70	100	7202	1.71
1.13	31/07/2017	capteur 1	80	30	2851	1.77
1.28	08/09/2017	capteur 1	80	50	4870	1.29
1.29	13/09/2017	capteur 1	80	50	5803	1.19
1.33	09/10/2017	capteur 1	80	50	1735	1.22
1.32	06/10/2017	capteur 1	80	70	4538	1.27
1.44	03/11/2017	capteur 2	100	30	13352	0.80
1.46	09/11/2017	capteur 2	100	30	13811	0.87
1.41	24/10/2017	capteur 2	100	50	12420	0.83
1.42	26/10/2017	capteur 2	100	70	7706	0.83
1.45	06/11/2017	capteur 2	100	70	9425	0.69
1.43	27/10/2017	capteur 1	100	85	12833	0.72
1.47	10/11/2017	capteur 3	100	85	20559	0.87
5.33	11/03/2019	capteur 4	150	-19	1144	0.10
5.39	14/03/2019	capteur 4	150	-19	2842	0.10

Table A.1 – Matrices des essais par classification électrostatique.

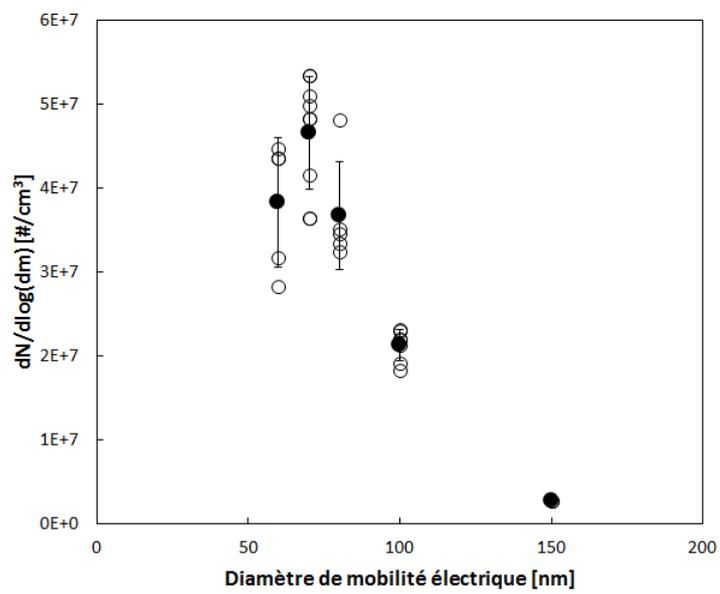


Figure A.1 – Concentration par diamètre de mobilité.

Annexe B

Observation de la charge des électrodes

Méthode Le chargement périodique des électrodes a été observé grâce au microscope électronique à balayage. Il est aussi possible d'observer ce phénomène avec un matériel bien plus rudimentaire. En effet, une simple loupe et un traitement d'image permet aussi d'observer cette périodicité. La Figure B.1 représente la photographie de l'élément sensible. Pour améliorer le contraste, plusieurs filtres ont été utilisés. Ici, nous nous sommes servi des fonctions fournies par Matlab : la photographie a d'abord été convertie en noir et blanc, pour faciliter l'étude de l'intensité des pixels. La brillance de cette image a été augmentée de 20, puis le filtre `wiener2` a été appliqué pour éliminer une partie du bruit de l'image. Il utilise, comme son nom l'indique, la méthode de déconvolution de Wiener en se basant sur les cinq voisins les plus proches d'un pixel pour recalculer sa valeur. Enfin, la fonction `imfilter` a été utilisée pour moyenner la valeur des pixels et rendre le profil de leur intensité plus lisible.

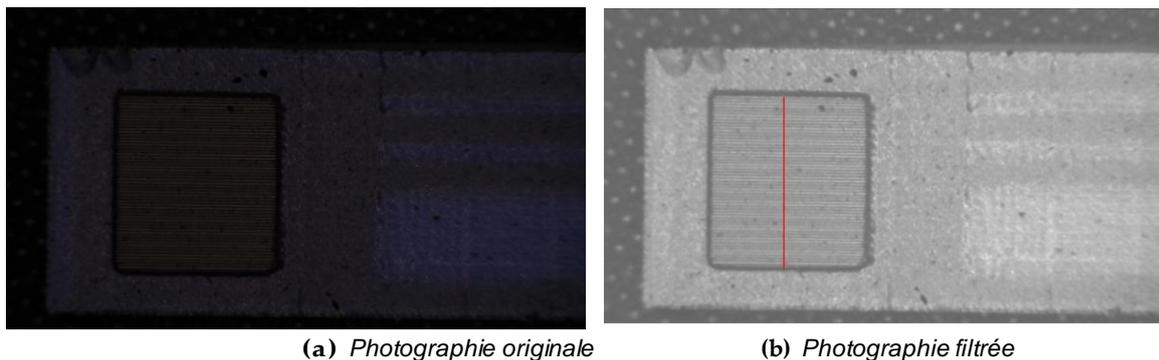


Figure B.1 – Vue globale du capteur.

Résultats Grâce à cette méthode rudimentaire, il est possible de tracer un profil d'intensité des pixels sur la ligne rouge de la Figure B.2. Les valeurs faible d'intensité des pixels correspondent à du gris foncé, et les valeurs élevées correspondent à

du gris clair. Plusieurs périodicités sont observables sur ce profil. Chaque maxima locaux sont séparés par des minima locaux. Ces derniers correspondent aux espaces interélectrodes, qui ressortent en gris foncé sur la Figure B.1. Les autres maxima correspondent aux électrodes.

Un autre motif se répète et est constitué de deux maxima locaux dont la valeur est inférieure aux deux maxima locaux suivants. Cette observation est particulièrement nette pour $x > 1000 \mu m$. Nous interprétons cette observation par un dépôt de suie supérieure sur deux électrodes sur quatre, ce qui correspond à la périodicité de leur polarisation.

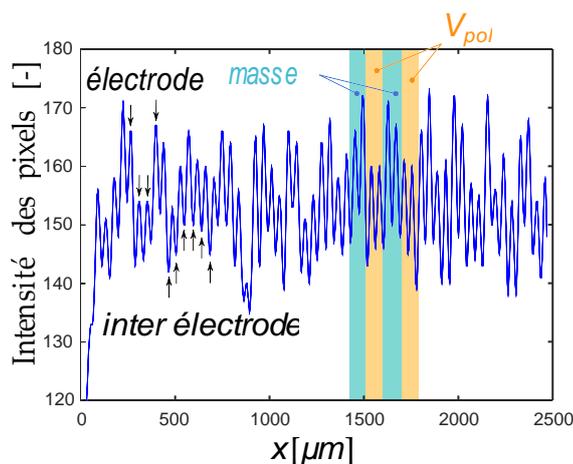


Figure B.2 – Observation de la périodicité du dépôt grâce à une loupe. Intensité des pixels en fonction de l'abscisse, le long de la ligne rouge.

Annexe C

Images par microscopie MEB

Les Figures C.1 et C.2 représentent plusieurs clichés MEB obtenus pour un même capteur soumis à un aérosol polydispersé de concentration $2 \times 10^7 \text{ part.} / \text{cm}^3$. Le capteur a été chargé avec une tension de polarisation de 50 V. Ce cliché illustre la diversité morphologique des micro-structures de suie à la surface d'un capteur résistif.

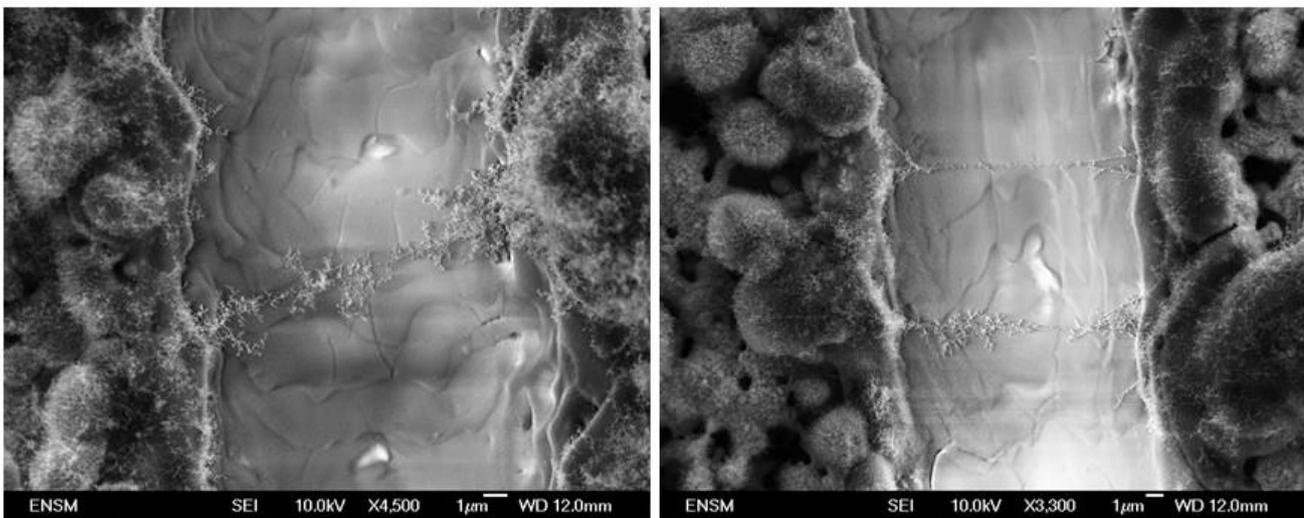


Figure C.1 – Clichés MEB d'un capteur résistif chargé en particules de suie.

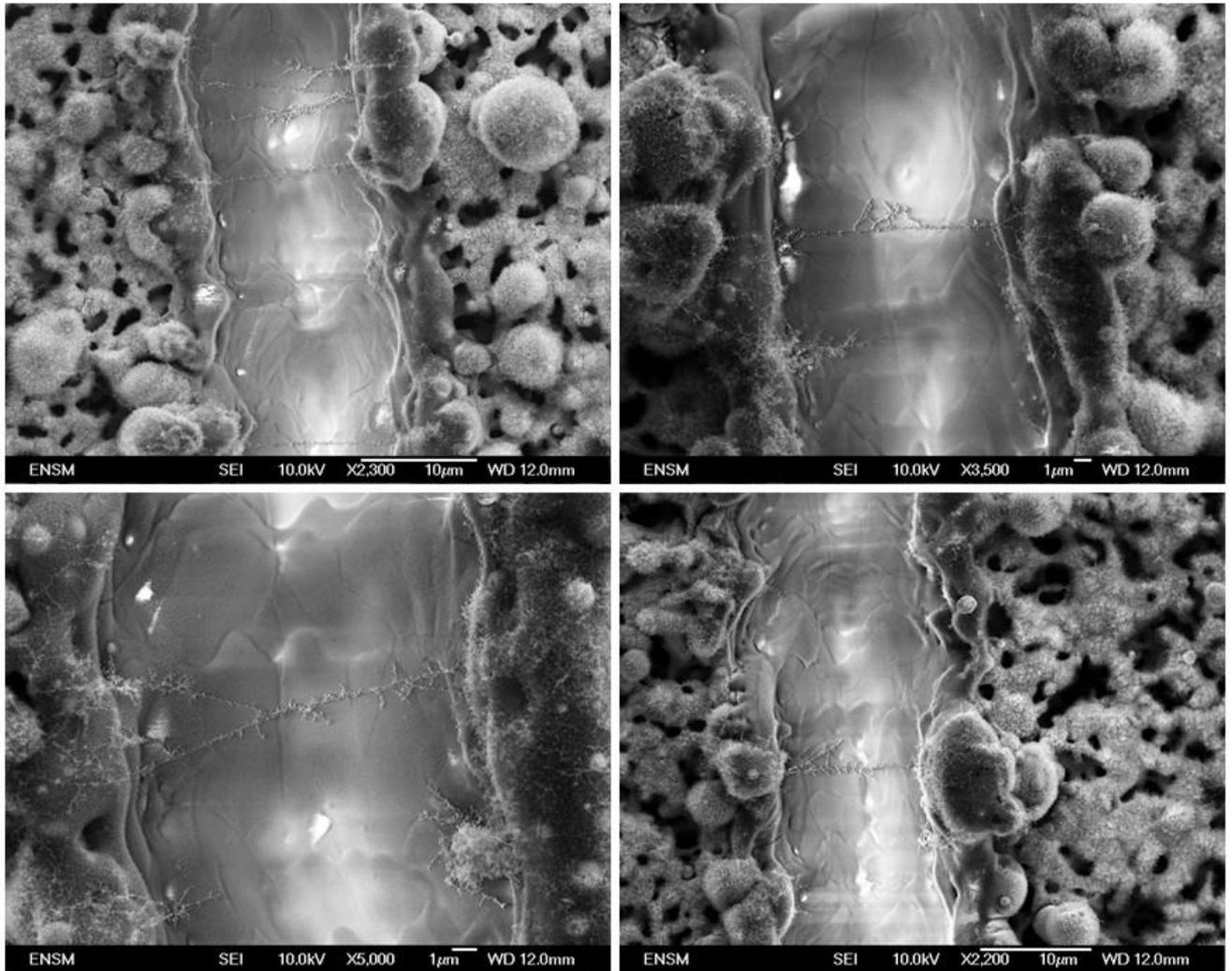


Figure C.2 – Clichés MEB d'un capteur résistif chargé en particules de suie.

Annexe D

Détection des sauts

Description et objectifs L'algorithme présenté ici a pour objectif de détecter les sauts de conductance dans la réponse d'un capteur de suie grâce à un seuil sur la valeur de la dérivée $\frac{\partial G}{\partial t}$, appelé epsilon (cf. Figure D.1). Cette technique est inspirée de la méthode mise en place par Didier Grondin dans sa thèse pour traiter le signal échantillonné à haute fréquence par la carte NI [8]. La valeur de ce paramètre a été fixé à 0.5 nS/s . Ce seuil a été choisi de telle sorte que le bruit du signal ne soit pas détecté. Pour cela, nous avons appliqué la détection des sauts au signal d'un capteur isolé de l'aérosol de suie. Cette technique nous a permis de réaliser un « blanc ».

Par ailleurs, cette technique nous permet de détecter des sauts relativement faibles, puisque la sensibilité de l'algorithme est d'environ $1 \mu\text{S}$.

```
1  clc; clear;
2
3  c = 1;% numéro du dataset à tracer
4  print_signal = 'yes'; % affichage (ou non) du signal
5  dt = 3600; % durée d'échantillonnage
6  epsilon = 5e-4; % sensibilité de l'échantillonnage
7  bin_width = 1; % largeur des bandes de l'histogramme
8  degree = 1; % degré de l'interpolation de la ligne de base
9
10 % chargement
11 % AAC
12 data {1}.value = xlsread('2018 -02 -08_da =70 nm_Vpol =60 V.xlsx');
13 data {1}.da = 70;
14 data {2}.value = xlsread('2018 -02 -08_da =70 nm_Vpol =60 V_bis.xlsx');
15 data {2}.da = 70;
16 data {3}.value = xlsread('2018 -02 -07_da =50 nm_Vpol =60 V.xlsx');
17 data {3}.da = 50;
18 data {4}.value = xlsread('2018 -02 -08_da =50 nm_Vpol =60 V.xlsx');
19 data {4}.da = 50;
20
21 %pre-traitement
22 data {1}.tperc = 1652; data {1}.tinf = data {1}.tperc + dt;
23 data {2}.tperc = 2320; data {2}.tinf = data {2}.tperc + dt;
24 data {3}.tperc = 3215; data {3}.tinf = data {3}.tperc + dt;
25 data {4}.tperc = 4217; data {4}.tinf = data {4}.tperc + dt;
26
27 %calcul de dérivée
28 param = 1;
29 for j = 1:length(data) %pour chaque set de données
30     t = data {j}.value (:,1);
31     G = data {j}.value (:,2);
32     for i = param+1:length(data {j}.value) - param -1 %pour chaque point
33         data {j}.dG(i,1) = (G(i+param,1) - G(i-param,1)) / (t(i+param,1) - t(i-param,1));
34         data {j}.dt(i,1) = t(i);
35     end
36 end
37
38 %retranchement de la ligne de base
39 x = data {c}.dt - data {c}.tperc;
40 y = data {c}.dG;
41 [p, S] = polyfitZero(x,y,degree);
42 [y_fit, delta] = polyval(p,x,S);
```

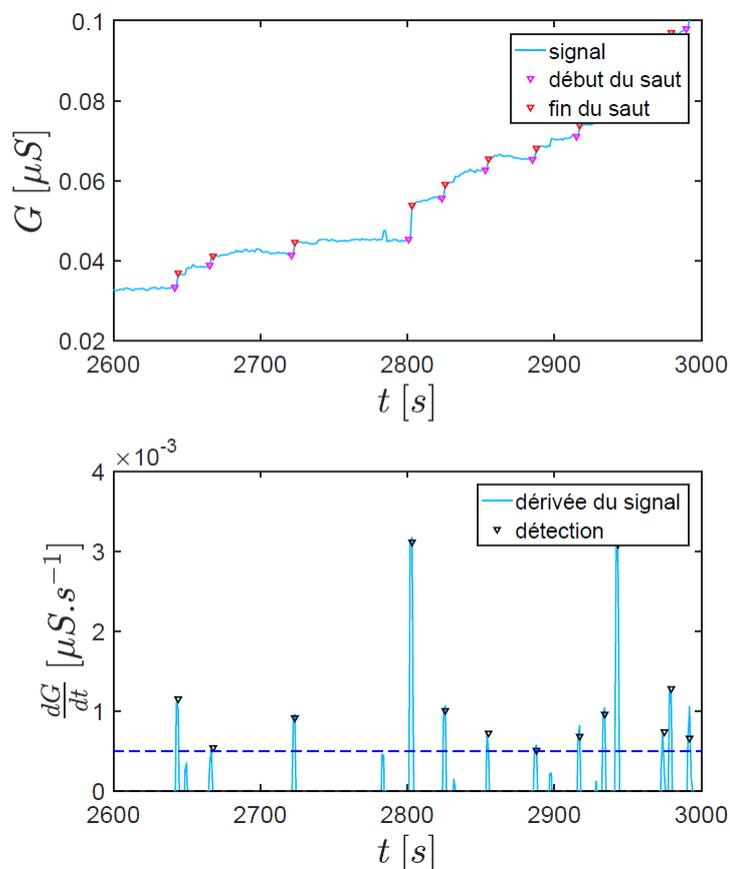


Figure D.1 – Illustration de la détection des sauts.

```

43 data {c}.dG = data {c}.dG - y_fit ;
44
45 %trouver les ponts
46 k_time_inf = find (data {c}.dt < data {c}.tinf);
47 k_sup = find (data {c}.dG(k_time_inf) > epsilon );
48 k_inf = k_sup - 1;
49
50 %vérifier que k_sup (i) > k_sup (i-1) + 3
51 toRem = [];
52 for i = 2: length (k_sup )
53     if k_sup (i,1) < k_sup (i-1,1) + 3
54         toRem = [toRem ; i];
55     end
56 end
57 k = find (k_inf == 0);
58 toRem = [toRem ; k];
59 k_sup (toRem (:,1), :) = [];
60 k_inf (toRem (:,1), :) = [];
61
62 %sauvegarde les données
63 data {c}.jumps (:,1) = data {c}.value (k_sup + param ,1) ;% instant des sauts
64 data {c}.jumps (:,2) = data {c}.value (k_sup + param ,2) ;% hauteur absolue des sauts
65 data {c}.jumps (:,3) = data {c}.dG (k_sup) ;% hauteur de la dérivée
66 k = find (data {c}.jumps (:,1) > data {c}.tperc);
67
68 %mesurer la hauteur des sauts
69 data {c}.height = data {c}.value (k_sup + param ,2) - data {c}.value (k_inf ,2) ;% hauteur des ponts (pas OK si c=2)
70
71 %vérifier que G(k_sup) > G(k_inf)
72 k = find (data {c}.height < 0);
73 data {c}.height (k, :) = [];
74
75 %\print{signal et dérivée}
76 pattern = {[0 0.75 1],[0 0.1 1],[255, 109, 109]}/255,[1 0 0],[1 0.5 0],[0 209 63]}/255};
77 LW = 1.25;
78 if strcmp (print_signal, 'yes ')
79     myF = figure (1);
80     set (gcf, 'Color', 'white', 'Units', 'centimeters');
81     set (myF, 'pos', [0 1.5 20 25]);

```

```

82 pos = get(myF, 'Position ');
83 set(myF, 'Paper Position Mode', 'Auto', 'Paper Units', 'centimeters', 'Paper Size', [pos(3), pos(4)])
84 myF.Renderer = 'Painters';
85 subplot(2,1,1)
86 set(gca, 'FontSize', 18, 'linewidth', LW, 'Grid Line Style', ':', 'Grid Alpha', 1, 'Grid Color', 'k',
      'xtick', 0:100:4*3600);
87 ax = gca;
88 xlabel('$t \text{ [s]}$', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 28)
89 ylabel('$G \text{ [}\mu\text{m S]}$', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 28)
90 hold on;
91 box on;
92 grid off;
93 % signal
94 plot(data{c}.value(:,1), data{c}.value(:,2), '-', 'Color', pattern{c}, 'Linewidth', LW);
95 % repérage des sauts
96 plot([data{c}.value(k_inf,1), data{c}.value(k_inf,2)], 'v', 'Color', 'm', 'Linewidth', LW, 'Marker Size',
      4);
97 if c == 4
98     plot(data{c}.value(k_sup+3,1), data{c}.value(k_sup+3,2), 'v', 'Color', 'k', 'Linewidth', LW, '
      Marker Size', 2);
99 else
100     plot(data{c}.value(k_sup+param,1), data{c}.value(k_sup+param,2), 'v', 'Color', 'r', 'Linewidth',
      LW, 'Marker Size', 4);
101 end
102 % limites
103 plot([data{c}.tperc data{c}.tperc], [0 max(data{c}.value(:,2))], '--', 'Color', 'g', 'Linewidth', LW)
      % intervalle de temps
104 plot([data{c}.tinf data{c}.tinf], [0 max(data{c}.value(:,2))], '--', 'Color', 'g', 'Linewidth', LW); %
      intervalle de temps
105 legend({'signal', 'début du saut', 'fin du saut'})
106 subplot(2,1,2)
107 set(gca, 'FontSize', 18, 'linewidth', LW, 'Grid Line Style', ':', 'Grid Alpha', 1, 'Grid Color', 'k',
      'xtick', 0:100:4*3600);
108 ax = gca;
109 xlabel('$t \text{ [s]}$', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 28)
110 ylabel('$\frac{dG}{dt} \text{ [}\mu\text{m S.s}^{-1}\text{]}$', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 28)
111 hold on;
112 box on;
113 grid off;
114 plot(data{c}.dt(:,1), data{c}.dG(:,1), '-', 'Color', pattern{c}, 'Linewidth', LW); %
115 plot(data{c}.jumps(:,1), data{c}.jumps(:,3), 'v', 'Color', 'k', 'Linewidth', LW, 'Marker Size', 4); %
      marqueurs des sauts
116 plot([0 max(data{c}.dt(:,1))], [0 0], '--', 'Color', 'k', 'Linewidth', LW); % ligne de base
117 plot([0 max(data{c}.dt(:,1))], [epsilon epsilon], '--', 'Color', 'b', 'Linewidth', LW); % seuil de
      détection
118 plot([data{c}.tperc data{c}.tperc], [0 max(data{c}.dG(:,1))], '--', 'Color', 'g', 'Linewidth', LW); %
      intervalle de temps
119 plot([data{c}.tinf data{c}.tinf], [0 max(data{c}.dG(:,1))], '--', 'Color', 'g', 'Linewidth', LW); %
      intervalle de temps
120 axis([2600 3000 0 0.004])
121 legend({'dérivée du signal', 'détection'})
122 end
123
124 myF2 = figure(2);
125 hold on; grid off; box on;
126 set(gcf, 'Color', 'white', 'Units', 'centimeters');
127 set(myF2, 'pos', [5 1.5 20 15]);
128 pos = get(myF2, 'Position ');
129 set(myF2, 'Paper Position Mode', 'Auto', 'Paper Units', 'centimeters', 'Paper Size', [pos(3), pos(4)])
130 myF2.Renderer = 'Painters';
131 set(gca, 'FontSize', 18, 'linewidth', LW);
132 xlabel('$G \text{ [nS]}$', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 28)
133 ylabel('Probabilité [-]', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 28)
134 histogram((data{c}.height).*1e3, 'Bin Width', bin_width, 'Normalization', 'probability', 'Edge Color', 'none',
      'Face Color', pattern{c})
135 plot([mean(data{c}.height.*1e3) mean(data{c}.height.*1e3)], [0 1], '--', 'Color', pattern{c}, 'Linewidth',
      LW); % moyenne
136 text(mean(data{c}.height.*1e3), 0.35, ['moyenne : ', num2str(mean(data{c}.height.*1e3)), ' nS'],
      'FontSize', 18, 'Color', pattern{c});
137 axis([0 0.02.*1e3 0 0.4])
138 disp(['moyenne = ', num2str(mean(data{c}.height).*1e3), ' nS'])
139 disp(['écart-type = ', num2str(std(data{c}.height).*1e3), ' nS'])
140 disp(['médiane = ', num2str(median(data{c}.height).*1e3), ' nS'])
141 disp(['fréquence = ', num2str(length(data{c}.height)/dt), ' Hz'])

```

Annexe E

Validation des méthodes numériques

E.1 Validation de la méthode LBM

Pour valider le calcul en dynamique des fluides utilisé pour le suivi lagrangien des particules, la solution a été comparée avec les résultats obtenus avec le logiciel commercial Fluent. Pour cela, un écoulement entraîné par une vitesse de cisaillement $u_{cis} = 0.06 \text{ m/s}$, une viscosité de $10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ et un espace inter-électrode de $20 \text{ }\mu\text{m}$ a été considéré. La Figure E.1 représente le profil de la composante u_y de la vitesse à une hauteur de $10 \text{ }\mu\text{m}$ au-dessus des électrodes calculé avec les deux méthodes. Le comportement de la vitesse est identique quelque soit la méthode de calcul, et les valeurs sont proches. Toutefois, la valeur maximale est environ 17 % supérieure pour la solution calculée avec la LBM. En plus d'une méthode numérique différente, cette différence pourrait être attribuée à un maillage moins optimisé pour la LBM ($dx = 0.5 \text{ }\mu\text{m}$) que le maillage automatique de Fluent.

E.2 Validation de la méthode d'Euler

Le code réalisé dans le cadre de cette étude, et ayant pour objectif de modéliser le dépôt des particules de suie par une approche lagrangienne s'inspire de la méthode présentée par Teike *et al.* [35]. Les trajectoires ont été calculées grâce à une simple méthode d'Euler. Pour vérifier la fiabilité du suivi dans nos conditions, les trajectoires ont été comparées avec celles calculées par le logiciel commercial Fluent.

Pour cela, nous nous sommes placés dans des conditions simples : le déplacement de plusieurs particules sphériques et chargées entre deux électrodes planes. Le champ électrique est donc constant entre les plaques, ce qui permet de s'affranchir du calcul du champ électrique. De plus, l'électrode supérieure étant animée d'un mouvement de cisaillement, un écoulement de Couette est établi et est modélisé par une simple loi exprimant la vitesse en fonction de l'ordonnée des particules :

$$u_x(y) = \frac{u_{max}}{L_y} y \quad (\text{E.1})$$

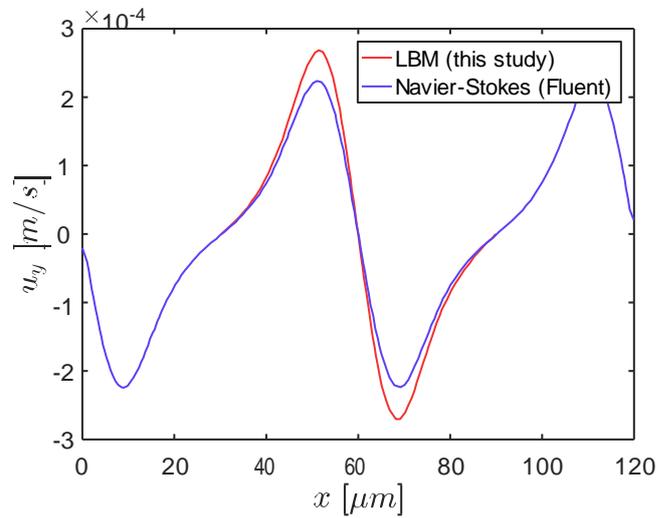


Figure E.1 – Comparaison des profils de vitesse pour deux méthodes numériques.

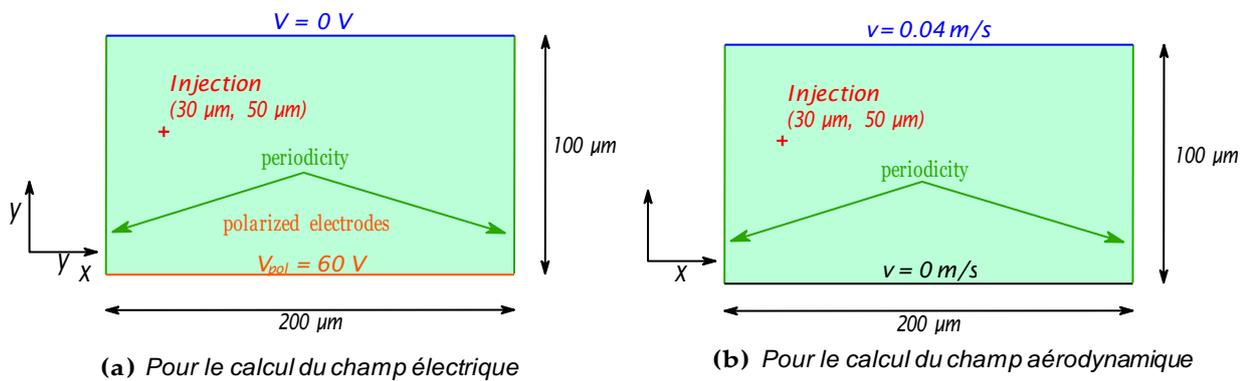


Figure E.2 – Conditions aux limites pour le calcul des champs.

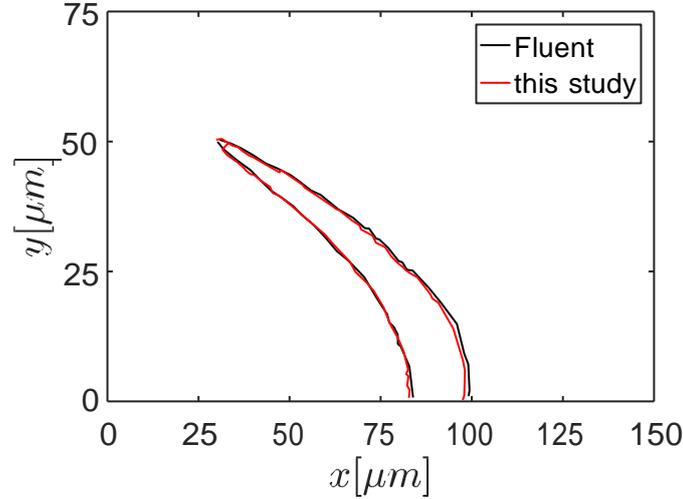


Figure E.3 – Comparaison du suivi lagrangien de cette étude avec celui opéré par Fluent.

Où $u_{max} = 0.1 \text{ m/s}$ est la vitesse de la paroi supérieure, positionnée à une hauteur $L_y = 100 \mu\text{m}$. Les conditions aux limites utilisées pour ces calculs de validation sont restitués dans la Figure E.2. De plus, les paramètres utilisés dans cette étude sont résumés dans la Table E.1.

Grandeur	Symbole	Valeur	Unité
Hauteur	L_y	100	μm
Largeur	L_x	200	μm
Vitesse de cisaillement	$u(L_y)$	0.1	m/s
Polarisation	V_{pot}	60	V
Champ électrique	E_y	6×10^5	V/m
Diamètre des particules	d_p	100	nm
Nombre de charge élémentaire	n_e	-1	-

Table E.1 – Résumé des paramètres des simulations.

Du fait de leur petite taille (100 nm), les particules étudiées ici sont largement soumises à la diffusion brownienne. Ceci confère un caractère aléatoire à leur trajectoire. Ainsi, il n'aurait été pertinent de comparer deux trajectoires calculées l'une avec Fluent, l'autre avec la méthode d'Euler implémentée pour cette étude. Il a donc été choisi de comparer des faisceaux de trajectoires. Pour cela, 100 particules ont été injectées en un même point ($x_{inj} = 30 \mu\text{m}$ et $y_{inj} = 50 \mu\text{m}$) et sans vitesse initiale. La Figure E.3 représente la comparaison entre le faisceau calculé par les deux méthodes. En particulier, ce sont les trajectoires qui bornent les faisceaux qui ont été tracés pour plus de visibilité. On peut voir que malgré une méthode numérique relativement simple (méthode d'Euler explicite), les résultats sont proches des calculs réalisés par Fluent. Notons que Fluent utilise une méthode de Runge-Kutta implicite [140].

De cette étude, nous concluons que dans nos conditions, l'utilisation de la méthode d'Euler explicite est suffisamment précise. Toutefois, cette méthode a ses

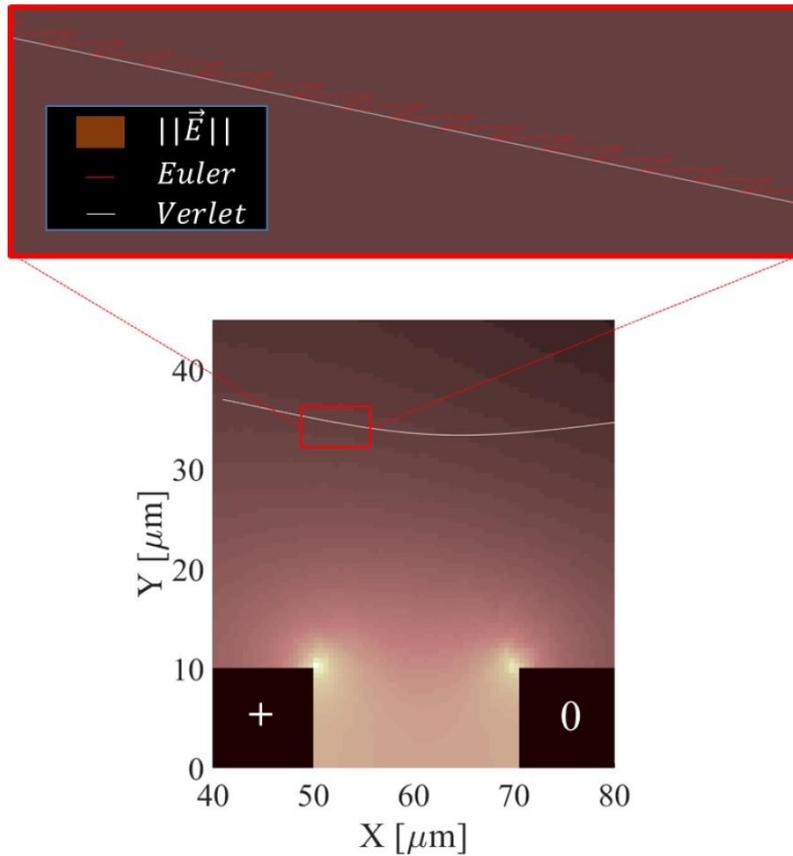


Figure E.4 – Comparaison de la méthode d’Euler et de l’algorithme de Verlet [130]. Ici $x = 2$, $u_{\max} = 0.1$ m/s. La force de Langevin a été désactivée ici pour mieux observer les deux solutions.

limites et ne permet pas d’étudier des particules dont le facteur de forme x est supérieur à 1, à cause d’instabilités numériques. De plus, cette validation concerne aussi l’implémentation des forces de traînée, électrostatique et la diffusion brownienne.

E.3 Validation de l’algorithme de Verlet

L’algorithme de Verlet aurait pu être validé de la même façon que la méthode d’Euler, mais une autre méthode a été utilisée ici. La trajectoire d’une particule a été calculée de deux façons différentes : d’une part avec la méthode d’Euler, validée auparavant, et d’autre part avec l’algorithme de Verlet. Pour palier au caractère aléatoire dû à la diffusion brownienne, cette dernière a simplement été retirée de la seconde loi de Newton. Il a été observé que les deux solutions étaient extrêmement proches. Pour l’illustrer, deux trajectoires ont été représentées sur la Figure E.4. Ces trajectoires ont été calculées pour un facteur de forme $x = 2$ avec deux méthodes différentes. On peut voir que la méthode d’Euler commence à rencontrer des instabilités numériques dans ces conditions. Toutefois, les deux solutions sont très proches l’une de l’autre.

Annexe F

Résumé des paramètres

Fluide			
Grandeur	Symbole	Valeur	Unité
Conductivité électrique	σ_f	5×10^{-15}	$S.m^{-1}$
Masse volumique	ρ_f	0.7794	$kg.m^{-3}$
Libre parcours des molécules	λ	109.2	nm
Permittivité relative	ϵ_f	1.006	-
Température	T_f	453.15	K
Viscosité cinématique	ν_f	3.2×10^{-5}	$m^2.s^{-1}$
Particules			
Masse volumique	ρ_p	800	$kg.m^{-3}$
Coefficient de correction (1)	a	1.142	-
Coefficient de correction (2)	β	0.558	-
Coefficient de correction (3)	γ	0.999	-
Conductivité électrique	σ_p	200	$S.m^{-1}$
Facteur de forme	x	1	-
Nombre de charges élémentaires	n	-3 - +3	-

Table F.1 – Résumé des paramètres des simulations.

Annexe G

Génération numérique d'agrégats

Génération automatique d'agrégats fractals

Algorithme L'idée principale derrière cet algorithme est la génération d'agrégats par un arrangement aléatoire de sphérules¹. Chaque sphérule est repérée, dans un repère cartésien, par son centre noté S_i , de coordonnées (x, y, z) , et son rayon r_{pp} . La première des N_{pp} sphérules S_1 constituant l'agrégat est placée en $(0, 0, 0)$. Puis, une deuxième sphérule S_2 est ajoutée aléatoirement par le choix aléatoire de deux angles, φ et θ , appartenant respectivement aux intervalles $[0, \pi]$ et $[0, 2\pi]$. La distance entre les centres S_1 et S_2 est de $2r_{pp} - \delta$, où δ constitue le recouvrement. La troisième sphérule S_3 est ensuite accolée à l'une des deux sphérules précédentes choisies aléatoirement.

Afin de générer des agrégats réalistes, l'algorithme devra prêter attention à ce que S_3 ne viole pas l'intégrité topologique de S_2 . Un test de recouvrement est donc réalisé entre S_3 et toutes les autres sphérules. Si le recouvrement est supérieur à δ , la sphérule S_3 est repositionnée aléatoirement à équidistance de S_1 et de S_2 . Enfin, la dimension fractale de l'agrégat constitué de S_1 , S_2 et S_3 est calculée. Elle doit être comprise dans une gamme de tolérance définie par D_f^{inf} et D_f^{sup} . Si tel est le cas, l'algorithme poursuit la construction de la particule virtuelle jusqu'à ce que le nombre de sphérule N_{pp} soit atteint. L'ensemble de ces étapes est résumé dans l'algorithme 4.

Enfin, les calculs aérodynamiques nécessiteront la connaissance préalable de deux paramètres : le centre de masse d'une part, permettra de positionner correctement l'agrégat dans le domaine de calcul. L'axe de rotation principal d'autre part, permettra d'orienter toutes les particules dans le flux d'air de la même façon. En effet, dans nos conditions, les particules de suie ne sont pas isotropes.

Paramètres et résultats Dans cette étude, la taille des sphérules a été choisie telle que $r_{pp} = 12.5nm$. Cette valeur repose sur des observations de particules de suie moteur au microscope électronique à transmission (MET) (références). Le choix des

1. Particules sphériques élémentaires constituant les agrégats.

Algorithm 4 Génération d'agrégats fractals

```

1: Initialisation de  $N_{pp}$ ,  $r_{pp}$ ,  $D_f$  et sa tolérance,  $k_f$  et  $\delta$ 
2: Initialisation de la première particule
3: for all sphérule  $N_{pp}$  do
4:   Choix d'une sphérule aléatoire parmi celles existantes
5:   Arrangement aléatoire sur cette sphérule :  $(\varphi, \theta) \in [0, \pi] \times [0, 2\pi]$ 
6:   Test de recouvrement
7:   if Pas de recouvrement then
8:     Calcul de la dimension fractale  $D_f$ 
9:     if  $D_f \notin [D_f^{inf}; D_f^{sup}]$  then
10:      go to 4
11:     end if
12:   else
13:     Repositionnement de la sphérule
14:   go to 4
15:   end if
16: end for
17: Calcul du centre de masse
18: Calcul de l'axe de rotation principal
  
```

trois autres paramètres D_f , k_f et δ est plus complexe car chacun de ces grandeurs sont inter-dépendantes, du fait de la relation :

$$N_{pp} = k_f \frac{R_g(\delta)^{D_f}}{r_{pp}} \quad (\text{G.1})$$

La littérature est riche en méthodes permettant de déterminer ces paramètres, et sont soumises à controverses (*cf.* Section 1.4.4). Les paramètres retenus pour cette étude (*cf.* Table G.1) reposent entre autres sur les résultats expérimentaux présentés par Ouf *et al.* [56] car ils sont en accord avec d'autres résultats présentés dans la littérature (références?).

Grandeur	Symbole	Valeur	Unité
Nom bre de sphérules	N_{pp}	4 - 30	-
Ray on des sphérules	r_{pp}	12.5	nm
Pré-facteur fractal	k_f	2	-
Recouvrement	$\angle r_{pp} - \frac{rr}{\sigma}$	3	nm
Paramètre de recouvrement	δ	1.1364	-
Dim ension fractale cible	D_f	100	nm

Table G.1 – Paramètres de l'algorithme de génération des particules.

Grâce à l'algorithme présenté précédemment, des particules ont été générées afin de calculer la traînée qui s'exercent sur elles. La Figure G.1 représente un échantillon des particules générées dans le cadre de cette étude.

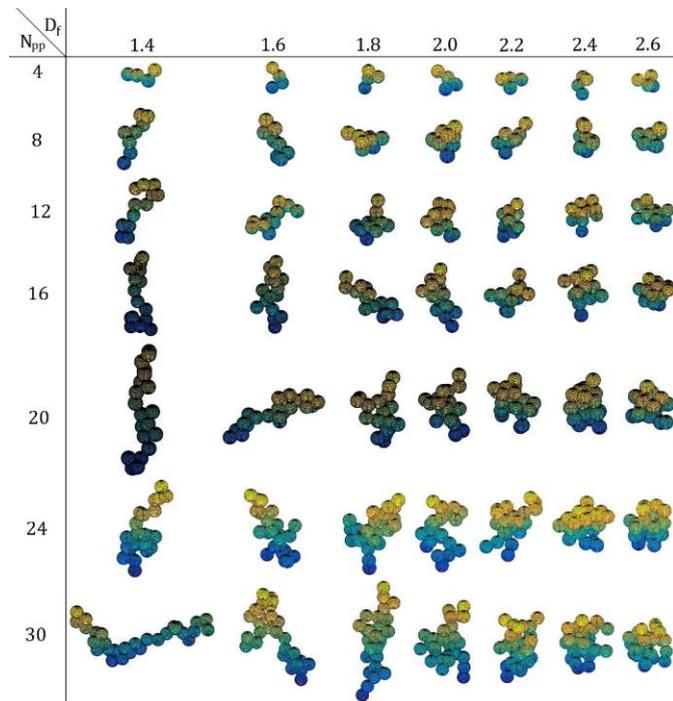


Figure G.1 – Echantillon de particules générées avec Aglogen [131].

Annexe H

Méthodes numériques pour l'étude aérodynamique des agrégats fractals

La géométrie complexe des particules de suie en fait des objets complexes à étudier. Dans le cadre de l'étude aérodynamique pour le calcul des facteurs de forme, une attention particulière a été portée sur le maillage et le choix du solveur. Les paragraphes qui suivent résument le travail réalisé par Iosifidis *et al.* [131] dans le cadre de ce travail de thèse.

H.1 Maillage

Du fait des angles aigus que forment sphérules soudées, le maillage peut se montrer problématique car les cellules ont tendance à s'y déformer (*cf.* Figure H.1). Les points des mailles sont alors susceptibles d'être coplanaires, on parle de mailles dégénérées. De telles mailles ne sont pas souhaitables pour résoudre les équations de Navier-Stokes et introduisent des instabilités numériques conduisant à la divergence de la solution.

Une source de ce problème peut être traitée en amont, lors de la génération des particules fractales. Il convient alors d'éviter d'utiliser des paramètres de recouvrement (notés δ dans la Section 4.8) trop faibles (*ie.* proche de 0). En effet, plus le paramètre de recouvrement est grand, moins l'angle à la frontière des particules est aigu.

Enfin, la qualité du maillage doit être contrôlée. En particulier, le guide de maillage d'ANSYS Fluent préconise de se pencher sur les paramètres *skewness*, qualité orthogonale et ratio d'aspect, qui doivent vérifier :

- *skewness* < 0.9
- qualité orthogonale $\rightarrow 1$
- ratio d'aspect $\rightarrow 1$

Ces critères sont illustrés par la Figure H.2. Enfin, les Figures H.3 et H.4 évaluent la qualité d'un maillage type utilisé dans le cadre de cette étude. Effectivement,

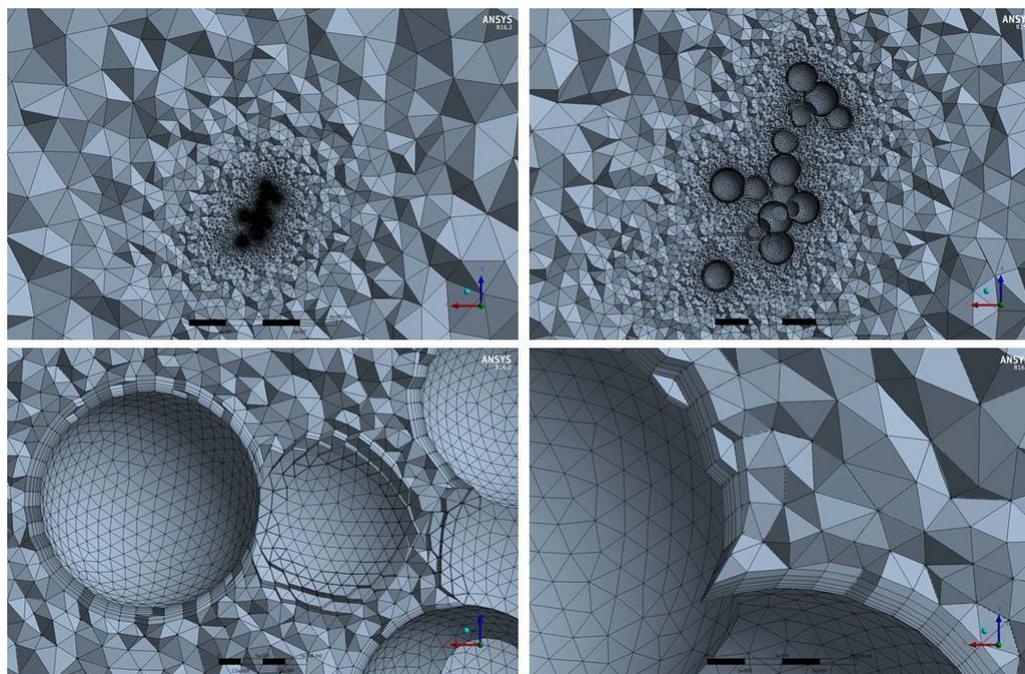


Figure H.1 – Maillage d'un agrégat de suie possédant $N_{pp} = 30$ sphérules [131].

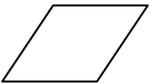
<i>skewness</i> idéal		> 0.9
ratio d'aspect	1	> 10
maille triangulaire		 
maille rectangulaire		 

Figure H.2 – Illustration des critères de qualité d'un bon maillage.

on peut constater que le critère *skewness* < 0.9 et que la plupart des mailles vérifient que la qualité orthogonale est proche de l'unité, puisque sa moyenne est supérieure à 0.85.

H.2 Solveur

L'écoulement que le solveur doit résoudre est stationnaire, incompressible et les vitesses en jeu sont faibles. Le solveur utilisé est celui de ANSYS Fluent, qui est un solveur volumes finis. Il existe plusieurs approches numériques pour résoudre les équations de Navier-Stokes parmi lesquelles figurent les solveurs basés sur la densité du fluide (*density-based solvers*) et ceux basés sur sa pression (*pressure-based solvers*). Historiquement, les *density-based solvers* ont été développés pour

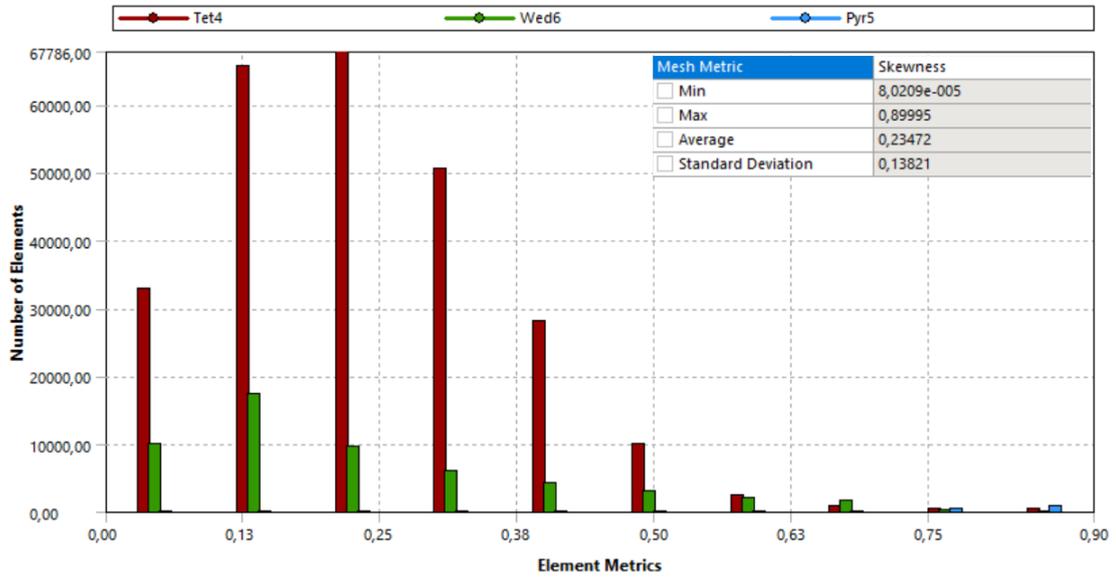


Figure H.3 – Histogramme du paramètre skewness pour un maillage type [131].

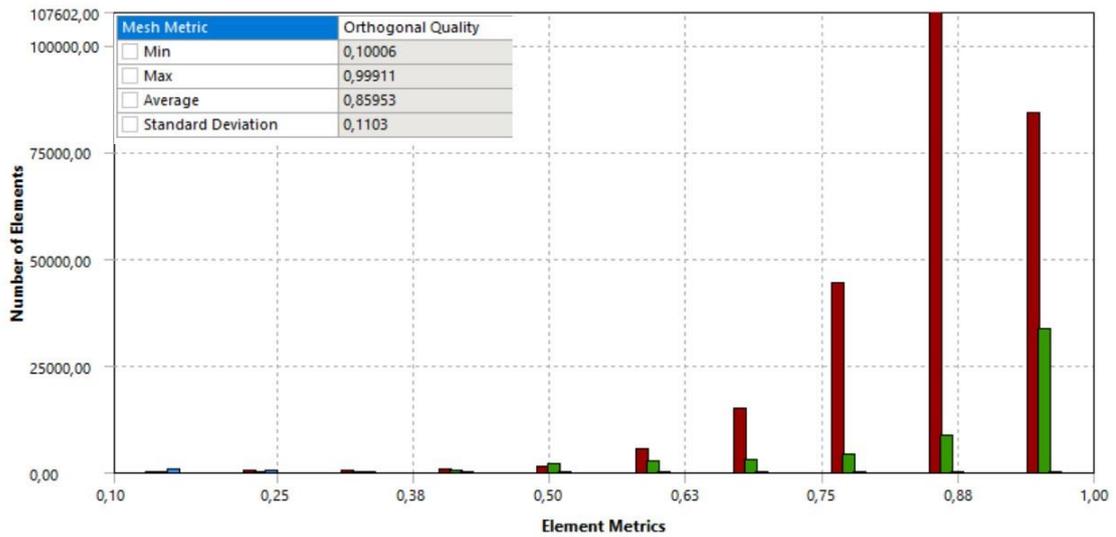


Figure H.4 – Histogramme du paramètre qualité orthogonale pour un maillage type [131].

résoudre des écoulements compressibles à haut nombre de Mach¹, à l'inverse des *pressure-based solvers*.

Les *density-based solvers* utilisent l'équation de continuité pour calculer le champ de densité $\rho(\underline{x}, t)$, puis une équation d'état pour en déduire le champ de pression $P(\underline{x}, t)$. De plus, le pas de temps entre deux itérations est calculé en fonction du temps caractéristique acoustique². Or, il est d'autant plus important que le nombre de Mach est faible. Ainsi, pour un écoulement incompressible, le nombre de Mach est tel que $Ma \rightarrow 0$, si bien que le pas de temps est très faible. Ceci a pour effet d'augmenter significativement le coût en temps de calcul.

Les *pressure-based solvers* reposent sur une résolution indirecte des équations de Navier-Stokes. Pour cela il faut faire l'hypothèse que l'écoulement est incompressible, c'est-à-dire que $Ma = 0$. Les équations de continuité et de conservation de la quantité de mouvement peuvent alors être manipulées pour faire apparaître une équation de Poisson sur la pression. Pour cette résolution, le pas de temps est calculé sur la base de la vitesse du fluide et non sur la vitesse du son, ce qui augmente le pas de temps, et réduit par conséquent le coût en temps de calcul.

En assimilant l'air à 180 degrés Celsius à un gaz parfait, la vitesse du son vaut :

$$c_s = \sqrt{\frac{RT_f}{M_f}} = 1.4 \times \sqrt{\frac{8.314 \times 453.15}{28.976 \times 10^{-3}}} = 13.5 \text{ m.s}^{-1} \quad (\text{H.1})$$

Où γ est l'indice adiabatique, R la constante des gaz parfaits et M_f la masse molaire du milieu. Ce qui permet de calculer que le nombre de Mach qui vaut :

$$Ma = \frac{v_f}{c_s} = \frac{1}{13.5} = 2.2 \times 10^{-3} \quad (\text{H.2})$$

Ce qui permet de conclure que le solveur le plus approprié pour la résolution de l'écoulement au voisinage d'un nano-agrégat de sphérules est le *pressure-based solver*. Toutefois, de nos jours, des améliorations ont été implémentées à chacune des méthodes si bien qu'elles conviennent chacune à une large gamme de nombre de Mach. Pour cette étude, nous nous sommes quand même basés sur le solveur traditionnellement recommandé dans notre cas : le *pressure-based solver*.

Enfin, les schémas de discrétisation utilisés sont reportés dans la Table H.1.

Grandeur	Méthode
Gradient $\nabla\phi$	Green-Gauss Node based
Pressure	Second order
Momentum	Second order upwind

Table H.1 – Résumé des paramètres des schémas de discrétisation [131].

1. Défini par $Ma = \frac{v_f}{c_s}$, où v_f est la vitesse du fluide et c_s la vitesse du son se propageant dans le milieu.

2. Défini par $t_a = \frac{l}{c_s}$, où l est la longueur caractéristique du système.

Annexe I

Electrorotation

Winter et Welland [134] ont établi une équation pour prédire la rotation d'une ellipsoïde plongée dans un champ électrique. La méthode est d'abord décrite, plus l'implémentation avec une méthode de type Runge-Kutta sera présentée.

I.1 Modèle analytique

Le modèle décrivant la rotation d'une ellipsoïde de rayons $l = (a, b, c)$, il est nécessaire de commencer par définir les intégrales elliptiques, A et A_i :

$$A_i = \int_0^{\infty} \frac{ds}{(s + l_i^2) \sqrt{(s + a^2)(s + b^2)(s + c^2)}} \quad (\text{I.1})$$

$$A = \int_0^{\infty} \frac{ds}{\sqrt{(s + a^2)(s + b^2)(s + c^2)}} \quad (\text{I.2})$$

Trois moments sont en jeu dans le processus d'électrorotation. Le principe fondamental de la dynamique peut s'écrire :

$$\underline{\bar{a}} = M^E + M^H \quad (\text{I.3})$$

Où $\underline{\bar{a}}$ est l'accélération angulaire qui s'exprime par $\frac{d^2\theta}{dt^2}$. \mathcal{J} représente le moment d'inertie, M^E le moment électrique et M^H le moment hydrodynamique. Détaillons l'expression de chacun de ces moments. Premièrement, le moment d'inertie d'une ellipsoïde est donné par l'expression :

$$\bar{\mathcal{I}} = \frac{4}{15} \pi \rho_p abc \begin{pmatrix} b^2 + c^2 & 0 & 0 \\ 0 & c^2 + a^2 & 0 \\ 0 & 0 & a^2 + b^2 \end{pmatrix} \quad (\text{I.4})$$

De plus, le moment M_E s'écrit :

$$M^E = p \wedge E \quad (I.5)$$

Où E est le champ électrique au voisinage de la particule et p le moment dipolaire. Choisissons un système de coordonnées orthonormées formé par des vecteurs parallèles aux axes de l'ellipsoïde. L'expression du champ électrique E^{int} à l'intérieur d'une particule plongée dans un champ uniforme E est :

$$E_i^{int} = \frac{E_i}{1 + abc \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{2\varepsilon_m} A_i} = \frac{E_i}{k_i} \quad (I.6)$$

Dans la suite, le coefficient k_i sera utilisé pour simplifier les expressions mathématiques. A partir de la relation (I.5), T. B. Jones détermine une expression analytique du moment M^E d'une ellipsoïde [141] :

$$M^E = \frac{4}{3} \pi abc (\varepsilon_p - \varepsilon_m) \begin{pmatrix} E_y E_z (k_x^{-1} - k_y^{-1}) \\ E_x E_y (k_x^{-1} - k_z^{-1}) \\ E_x E_z (k_y^{-1} - k_z^{-1}) \end{pmatrix} \quad (I.7)$$

Enfin, le moment hydrodynamique a pour expression [142] :

$$M^H = \frac{16}{3} \pi \nu_f \begin{pmatrix} \frac{d\theta_z}{dt} (b^2 + c^2) / (A_y b^2 + A_z c^2) \\ (c + a) / (A_z c + A_x a) \\ \frac{d\theta_z}{dt} (a^2 + b^2) / (A_x a^2 + A_y b^2) \end{pmatrix} \quad (I.8)$$

A partir de la relation (I.3), et de l'expression des moments, la deuxième loi de Newton projetée sur l'axe Oz s'écrit :

$$\frac{4}{15} \pi \rho_p abc (a + b) \frac{d^2 \theta_z}{dt^2} + \frac{16}{3} \pi \nu_f \frac{a^2 + b^2}{a^2 A_x + b^2 A_y} \frac{d\theta_z}{dt} = \frac{2}{3} \pi abc \varepsilon_0 (\varepsilon_p - \varepsilon_m) \left(\frac{1}{k_x} - \frac{1}{k_y} \right) E^2 \sin 2\theta_z \quad (I.9)$$

Cette équation représente l'évolution de l'angle $\theta_z(t)$ entre le grand axe de l'ellipsoïde et le champ électrique. Ici, nous considérerons une rotation autour d'un seul axe, normal au grand axe de l'ellipsoïde. Une hypothèse pour établir cette équation différentielle est que le champ électrique soit constant. Ceci est une hypothèse forte simplifiant le problème et dont il faudra tenir compte dans les conclusions.

L'équation de la rotation n'est pas facilement solvable analytiquement, mais peut être résolue grâce à une méthode numérique. Dans leur article, [134] *et al.* proposent de l'intégrer avec une méthode intégrée de Cash-Karp-Runge-Kutta d'ordre 4.

I.2 Implémentation

Le code utilise la méthode de Cash-Karp-Runge-Kutta [140] pour résoudre l'équation de rotation d'une particule ellipsoïdale dans un champ électrique constant.


```

61     k = zeros (6,1) ;
62     l = zeros (6,1);
63     for j = 1:6
64         K = k'*BT(j,2:end)';           % Produit scalaire pour pondérer les coefficients k(j)
65         L = l'*BT(j,2:end)';
66         k(j) = z(n,i)+dt*L;
67         l(j) = (1/alpha)*(beta*(z(n,i)+ dt*L)+ gamma*E^2* sin (2*(y(n,i)+ dt*K)));
68     end
69     Sk_j = k'* BT(end , 2:end)';
70     Sl_i = l'* BT(end , 2:end)';
71     y(n,i+1) = y(n,i) + dt* Sk_j;
72     z(n,i+1) = z(n,i) + dt* Sl_i;
73 end
74 end
75 toc
76
77
78 myF = figure ;
79 hold on;
80 myPattern = {[1 0.2 0.2] , [0 0.5 1] , [0.4660 0.6740 0.1880] , 'k'};
81
82 pos = get (myF, 'Position ');
83 set(gcf, 'Units', 'centimeters', 'pos', [5 1.5 20 15],...
84     'Paper Position Mode','Auto','Paper Units','centimeters');
85 % Paramètres axes
86 set(gca, 'FontSize', 24, 'linewidth',1, 'Grid Line Style', ':', 'Grid Alpha', 1, 'Grid Color', 'k',...
87     'X tick',0:t_max/4:t_max, 'Y tick', -pi/4:pi/16:pi/4, 'FontName','CMU Sans Serif');
88 ylabel({'-\pi/4', '-3\pi/16', '-\pi/8', '-\pi/16', '0', '\pi/16', '\pi/8', '3\pi/16', '\pi/4'})
89 ax = gca;
90 % ax.XAxis.Exponent = 0;
91 % axis([0 t_max -pi/4 pi/4]);
92 xlabel ('$t [s]$', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 30, 'Fontname', 'CMU Sans Serif')
93 ylabel ('$ \theta [rad]$', 'Interpreter', 'latex', 'FontSize', 30, 'Fontname', 'CMU Sans Serif')
94 % Courbes
95 hold on;
96 box on;
97 grid off;
98 plot(t, y(1,:), '-','color', myPattern{1});

```

Annexe J

Modèle d'oxydation

J.1 Bilan thermique et modèle de cinétique chimique

Les ponts de suies sont des structures complexes, formées par un assemblage de d'agrégats fractals de nanoparticules primaires de diamètre $d_{pp} \approx 25 \text{ nm}$. Dans ce modèle, une structure est simplifiée par un cylindre plein de rayon $r(t)$. Le cylindre reliant deux électrodes, il est traversé par un courant i , ce qui génère une dissipation de chaleur par effet Joule. De plus, la suie est un composé pouvant s'oxyder au contact de l'air, ce qui constitue une réaction exothermique. Enfin, le cylindre est soumis à d'autres transferts thermiques tels que sont la conduction, la radiation et la convection. L'équation de la chaleur dans le cylindre, assimilé à un fil, peut s'écrire :

$$\frac{\delta Q}{dt} = mC_p \frac{\partial T}{\partial t} = P_{cond} + P_{conv} + P_{rad} + P_{Joule} + P_{ox} \quad (\text{J.1})$$

En développant l'équation (J.1), on peut écrire l'équation aux dérivées partielles (J.2) qui sera discrétisée pour être résolue par une méthode aux différences finies en imposant des conditions aux limites de température (conditions de Dirichlet) à gauche et à droite.

$$\frac{\partial T}{\partial t} = kV \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + hS(T - T_\infty) + EoS(T - T_\infty) - \frac{\rho_0 dx}{a(T - T_0) S_{dis}} \frac{dm}{dt} PCI \quad (\text{J.2})$$

Où k est le coefficient de conductivité thermique, dx la longueur d'un élément infinitésimal du cylindre, S sa surface, S_{dis} sa section droite et V son volume. h représente le coefficient de convection, T_∞ la température du gaz à l'infini, T_0 , ρ_0 et a sont des constantes permettant de calculer la résistance de la suie en fonction de sa température [8]. Enfin, $\frac{dm}{dt}$ est le taux de variation de la masse dû à l'oxydation du cylindre et PCI est le pouvoir calorifique inférieur de la suie. Les valeurs de ces constantes sont restituées dans la table J.1.

Pour modéliser l'oxydation, la masse $dm(t)$ de carbone solide transformée en gaz (CO ou CO_2) est calculée grâce à une loi d'Arrhenius modifiée, notamment utilisée par Chan *et al.*, 1986 [143] :

$$C + O_2 \rightarrow CO/CO_2$$

$$\frac{dm}{dt}(t) = k_0 m(t)^a P_{O_2}^\beta e^{-\frac{E^\ddagger}{RT(x,t)}} \quad (\text{J.3})$$

Où k_0 un coefficient pré-exponentiel déterminé expérimentalement, P_{O_2} la pression partielle de dioxygène et E^{\ddagger} l'énergie d'activation du carbone constituant les suies. a et β sont des constantes expérimentales. Les constantes de ce modèle sont issues de la littérature, nous utiliserons en particulier celles mesurées par Christelle Huguet dans sa thèse [117].

Constantes	Valeurs	Unités
a	-5×10^{-3}	K^{-1}
a	0.37	—
β	0.73	—
C_p	140	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
dx	1	μm
E^{\ddagger}	72	$kJ.mol^{-1}$
h	1×10^3	$W.m^{-2}.K^{-1}$
k	300	$W.m^{-1}.K^{-1}$
k_0	1×10^{-3}	$kg^{1-\beta}.Pa^{\alpha}.s^{-1}$
L	20	μm
P_{O_2}	0.2	bar
PCI	1×10^6	$J.kg^{-1}$
$r(x, t = 0)$	28	nm
ρ	1800	$kg.m^{-3}$
ρ_0	5×10^{-3}	$\Omega.m$

Table J.1 – Résumé des constantes.

J.2 Méthode numérique

Au cours de cette étude, nous nous sommes intéressés à deux modèles, chacun adaptés aux phénomènes étudiés. Le premier a pour objectif de modéliser le système à une petite échelle de temps (quelques nanosecondes) alors que le second est destinée à simuler son comportement sur plusieurs minutes.

J.2.1 Modèle à un pas de temps (1T)

L'objectif de ce premier modèle est de simuler l'évolution de la température dans un cylindre de suie jusqu'à l'équilibre thermique. Ce modèle a d'abord été développé au cours de la thèse de Didier Grondin [8]. Le phénomène d'érosion chimique a été ajouté au cours de la présente étude.

Ce phénomène est pris en compte de deux façons : la première est le calcul de l'enthalpie résultant du changement de phase du carbone. La seconde est l'érosion physique du cylindre, traduite par une réduction du diamètre calculé grâce à la perte de masse calculée avec la loi d'Arrhenius (J.3). La température du système est calculée grâce à l'équation aux dérivées partielles (J.2). Elle est discrétisée sur un maillage en deux dimensions : une pour le temps et une pour l'espace. La solution est obtenue grâce à une méthode aux différences finies, représentée de façon schématique sur la Figure J.1. Le pas de temps caractéristique est donné par la condition CFL (Courant-Friedrichs-Lewy), et conditionne la stabilité de la méthode aux différences finies. Ainsi, un pas de temps de l'ordre de 10^{-13} secondes a été utilisé dans ces calculs. Au-delà de cette valeur, les résultats sont trop imprécis.

Un pas de temps aussi faible ne permet donc pas de simuler plusieurs minutes d'un tel phénomène. Or, l'oxydation à basse température fait évoluer le système très lentement, il est donc indispensable de calculer l'évolution de la température pour des durées plus importantes. Nous verrons dans le paragraphe suivant quel phénomène pourra être négligé afin de réaliser de tels calculs.

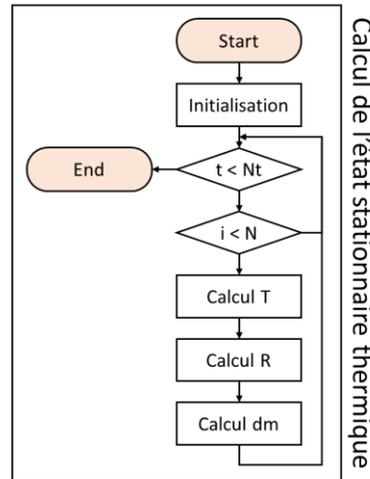


Figure J.1 – Algorithme pour le calcul de la température par différences finies. Nt et N correspondent respectivement au nombre de mailles temporelles et spatiales.

J.2.2 Modèle à deux pas de temps (2T)

L'objectif de ce modèle est de simuler l'évolution du système pour des durées plus importantes. Néanmoins, cela implique de poser une hypothèse : l'enthalpie de changement de phase due à l'oxydation du carbone des suies a été négligée. La justification de cette hypothèse est donnée dans la section J.3.1.

Négliger P_{ox} dans le bilan thermique revient à ne modéliser l'oxydation que par l'érosion physique du cylindre. Si un pas de temps dt_{ox} est choisi pour représenter le temps écoulé entre deux érosions successives, la masse perdue dans l'intervalle $[t; t + dt_{ox}]$ est $dm(t + dt_{ox})$. Cette perte de masse modifie le rayon du cylindre (cf. équation (J.4)) et donc son bilan thermique qu'il faut alors recalculer.

$$r_i^{n+1} = \sqrt{(r_i^n)^2 - \frac{dm_i^n}{\pi \times \rho \times dx}} \quad (\text{J.4})$$

Par ailleurs, en négligeant la puissance thermique libérée par la réaction d'oxydation, nous supposons que l'évolution du système vers un équilibre thermique ne dépend que de l'effet Joule et de la dissipation de la chaleur par convection, radiation et conduction. Or, cette évolution se fait quasi-instantanément [8] en comparaison du pas de temps d'oxydation, que nous prendrons tel que $dt_{ox} = 1$ s. Par conséquent, un équilibre thermique est atteint pour chaque pas de temps dt_{ox} .

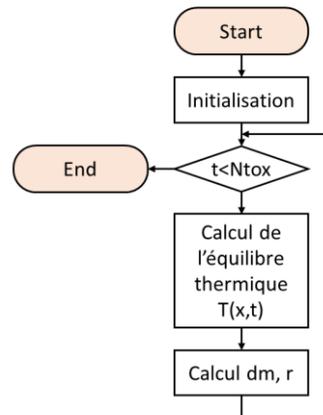


Figure J.2 – Algorithme pour les calculs de l'évolution du système aux grandes échelles de temps. N_{tox} correspond au nombre de « grands » pas de temps pendant lesquels la perte de masse intervient. Le calcul de l'équilibre thermique est réalisé par la méthode aux différences finies présentée dans la section J.2.1.

J.2.3 Modèle à deux pas de temps et à deux réactivités (2T2R)

L'objectif de ce modèle est de mieux comprendre les tendances observées expérimentalement, en particulier l'allure de la décroissance de la conductance. Dans sa thèse, Christelle Huguet modélise l'oxydation des suies par une approche distinguant des suies de réactivités différentes [117]. En effet, ses résultats expérimentaux mettent en évidence la présence de deux fractions massiques ayant des réactivités différentes. Le modèle présenté ici s'inspire de ce travail en représentant non pas le cylindre comme un matériau uniforme, mais constitué de deux composés C_1 et C_2 de réactivités distinctes :



C_1 et C_2 sont les fractions de carbone de réactivité différentes. Pour modéliser l'oxydation des ponts de suie, une loi d'Arrhenius a été utilisée :

$$\frac{dm(x, t)}{dt} = \sum_{i=1}^2 c_i k_{0,i} m_i(x, t)^\alpha P_{O_2}^\beta e^{-\frac{R E_{a,i}}{T}} \quad (J.6)$$

Où $k_{0,i}$ est le coefficient pré-exponentiel déterminé expérimentalement, P_{O_2} la pression partielle de dioxygène, $m_i(x, t)$ la masse de carbone, c_i la contribution du processus partiel à la perte de masse totale. α et β sont des constantes expérimentales. L'algorithme du modèle peut être représenté par la Figure J.3.

Les constantes cinétiques sont tirées du travail de Christelle Huguet, portant sur des suies « réelles » émises par un moteur thermique. Pour les calculs présentés ici, les énergies d'activation et les contributions de chaque processus partiel à la perte de masse totale ont été adaptées pour que le modèle soit en accord avec les ordres de grandeurs observés sur un échantillon de conductance (cf. Figure J.9). Elles sont restituées dans la Table J.2.

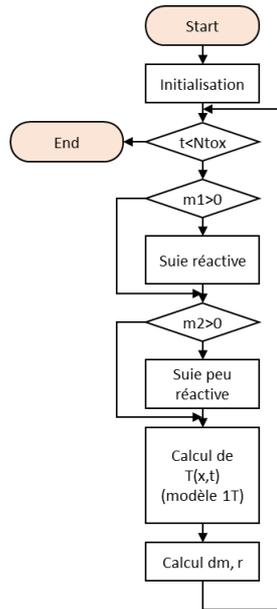


Figure J.3 – Algorithme du modèle à deux pas de temps et à deux suies.

Constantes	Huguet <i>et al.</i> [117]		Cette étude		Unités
	C_1	C_2	C_1	C_2	
a	0.37	0.37	0.37	0.37	-
β	0.73	0.73	0.73	0.73	-
c	0.2	0.8	0.3	0.7	-
F^*	72	175	63	165	$kJ.mol^{-1}$
k_0	1×10^{-3}	2×10^3	1×10^{-3}	2×10^3	$ka^{1-\beta} Pa^{-\alpha} s^{-1}$

Table J.2 – Adaptation des constantes cinétique aux données expérimentales.

J.3 Étude des différents modèles

J.3.1 Modèle à un pas de temps (1T)

Dans un premier temps, intéressons nous à l'évolution du système sur un intervalle de temps court. Un premier objectif est de montrer que la puissance dégagée par la réaction d'oxydation est négligeable devant les autres. Un second objectif est de montrer que le système évolue suffisamment rapidement l'intégrer dans les modèles 2T et 2T2R présentés plus haut.

Du fait de sa petite taille, le cylindre atteint rapidement un état d'équilibre thermique lorsqu'il est soumis à une différence de potentiel. Comme on peut le voir sur les Figures J.4, J.5, l'état stationnaire est atteint en moins de 0.1 nanosecondes. Dans les résultats présentés ici, c'est la suie la plus réactive qui est étudiée et la tension de polarisation vaut $V_{pol} = 30 V$.

Les Figures J.4 et J.5 représentent les puissances en jeu dans les échanges thermiques. Les transferts thermiques dominants sont la conduction et l'effet Joule dont l'ordre de grandeur est la centaine de nanoWatts. Enfin, l'enthalpie d'oxydation est

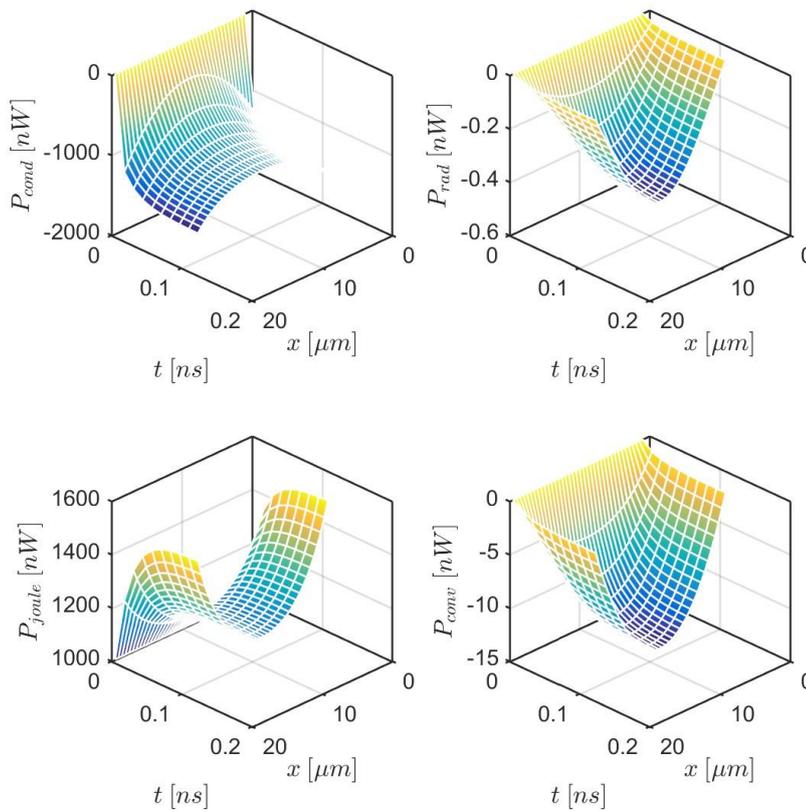


Figure J.4 – Conduction, radiation, effet Joule et convection en fonction du temps et de la dimension d'espace calculés avec le modèle 1T.

très inférieure à l'ensemble des autres puissances. Ceci justifie l'hypothèse faite pour pouvoir utiliser la méthode présentée dans la section J.2.2. De plus, la température a été représentée sur la Figure J.5 et a bien l'allure typique de la température dans une barre chauffée avec des conditions aux limites de type Dirichlet (température imposée).

J.3.2 Modèle à deux pas de temps (2T)

En tenant compte de l'oxydation comme d'une évolution géométrique du cylindre (*cf.* section J.2.2), le système a pu être étudié sur une durée de l'ordre de 10^3 secondes et au-delà en fonction de la réactivité de la suie. En l'occurrence, les résultats présentés ici correspondent un cylindre constitué de la suie la plus réactive (*cf.* Table J.2).

La température, pour des échelles de temps plus importantes, est relativement stable (*cf.* Figure J.6). Initialisée avec le profil de température calculé dans la section précédente, elle évolue peu avec le temps sauf à la fin du calcul. On peut observer que la température moyenne augmente de façon remarquable. Par ailleurs, le rayon du cylindre diminue de façon linéaire (*cf.* Figure J.6) dans un premier temps. La

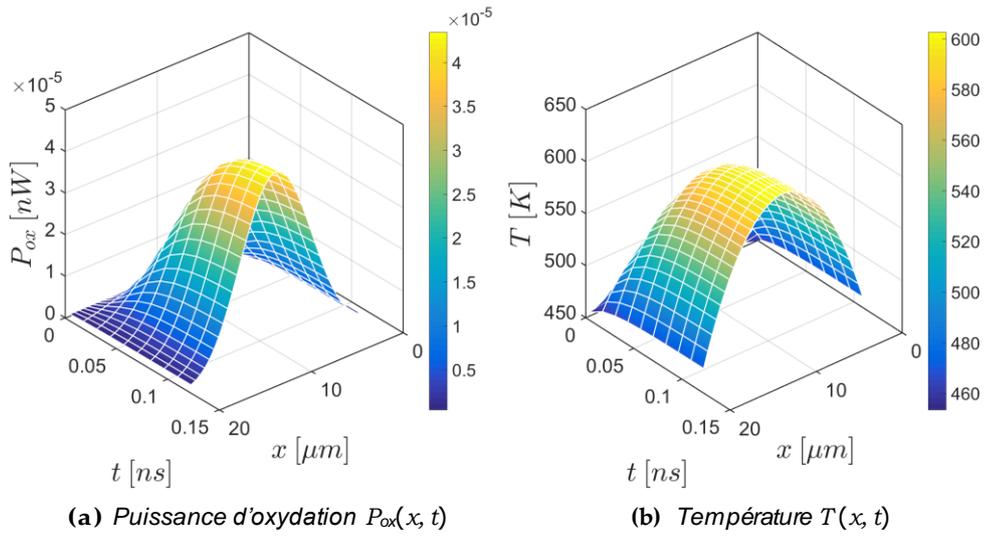


Figure J.5 – Puissance d'oxydation calculée avec le modèle 1T.

tendance de la décroissance semble exponentielle dans un second temps. Ces tendances sont cohérentes avec la loi d'Arrhenius : la masse de suie oxydée dépend de la température de façon exponentielle. La diminution du rayon entraînant une augmentation de la température par effet Joule, la réaction s'emballe avec le temps. La finalité d'un tel phénomène est la destruction du pont au milieu du cylindre, là où la température est la plus élevée.

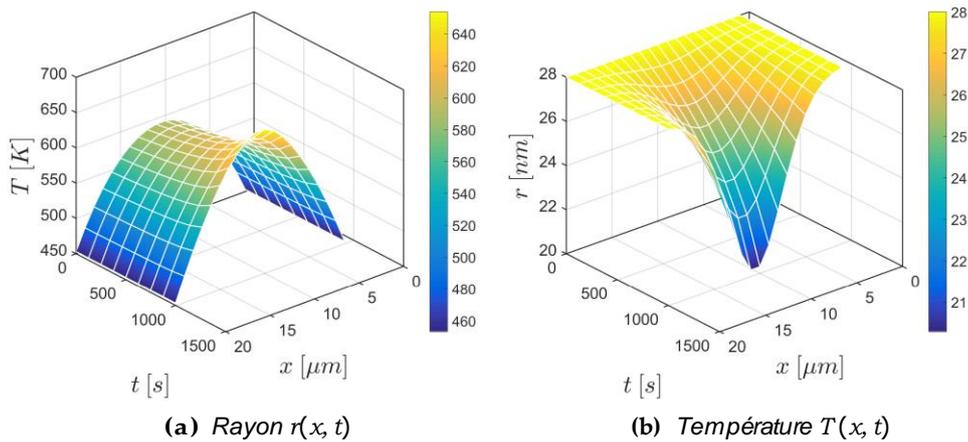


Figure J.6 – Propriétés du cylindre dans le modèle 2T.

L'accélération de la réaction d'oxydation peut aussi être constatée par le calcul de la conductance du cylindre. Comme le montre la Figure J.7, la tendance de la conductance n'est plus linéaire au voisinage de 1000 secondes. Ceci ne correspond pas à la réalité car, après formation d'un pont, la conductance diminue moins rapidement avec le temps.

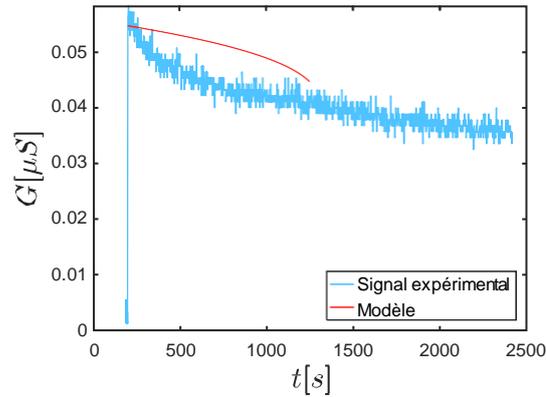


Figure J.7 – Conductance calculée avec le modèle 2T.

J.3.3 Modèle à deux pas temps et à deux réactivités (2T2R)

Afin d'apporter un degré de précision supplémentaire, le cylindre de suie est désormais composé de deux suies de réactivités distinctes (cf. section J.2.3).

Comme précédemment, la température, le rayon et la conductance ont été représentés en fonction du temps et/ou de la dimension de l'espace. Les constantes cinétiques étant largement différentes, une discontinuité de température est observée lorsque toute la suie dite « réactive » d'un élément infinitésimal a été consommée (cf. Figure J.8, à gauche). Elle croît d'abord de façon linéaire, puis semble se stabiliser. En réalité, elle continue d'évoluer lentement mais la réactivité est si faible que la pente est difficilement perceptible. Cette tendance est plus visible si l'on s'intéresse à d'autres grandeurs physiques. L'évolution du rayon témoigne bien de cette évolution (cf. Figure J.8).

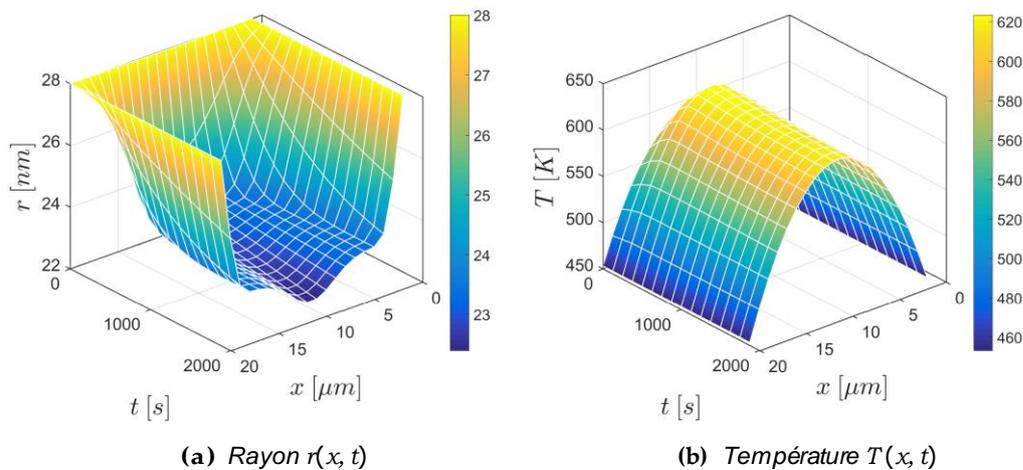


Figure J.8 – Rayon et température du cylindre soumis à l'oxydation dans le modèle 2T2R.

Enfin, la Figure J.9 représente la conductance et on peut constater qu'elle

ne décroît pas brutalement comme lorsqu'elle est calculée avec le modèle 2T. Le changement de réactivité ralentit la décroissance de la conductance si bien que son comportement se rapproche des observations expérimentales. Par ailleurs, $G(t)$ comprend des points non dérivables. Ces points sont des artefacts numériques dus à la discrétisation du domaine. En effet, à chaque fois qu'une maille atteint le rayon seuil r_1 à partir duquel sa réactivité change, sa conductance évolue différemment. Une discrétisation plus fine a donc tendance à lisser la courbe.

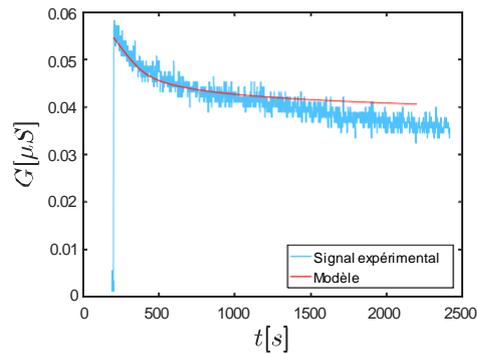


Figure J.9 – Modélisation de la décroissance du signal pour un cas particulier. Ici, $V_{\text{pol}} = 30 \text{ V}$, $E_1^\ddagger = 63 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $E_2^\ddagger = 165 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $c_1 = 0.3$ et $c_2 = 0.7$.

École Nationale Supérieure des Mines
de Saint-Étienne

NNT : *Communiqué le jour de la soutenance*

Adrien REYNAUD

Understanding and modeling the aerosol capture mechanisms by coupling aerodynamic and electric effects

Speciality : process engineering

Keywords : soot particles, resistive sensor, aerosol, exhaust after treatment

Abstract :

Ultrafine soot particle emissions from thermal engines have harmful health effects. Since Euro 3 standard, EOBD regulation obliges vehicles to perform the on-board diagnostic of their own aftertreatment system. Since Euro 6b standard, the particle number (PN) emitted from Diesel and gasoline engines is regulated. Resistive sensors evaluate a particulate matter (PM) of soot threshold exceedance. The nanoparticles are collected between interdigitated electrodes, building bridge-like micro-structures of which. Although their robustness and their low production cost make the resistive soot sensor a good candidate for the Diesel particulate filter diagnosis, the current understanding does not allow to access PN.

The objective of this work is to study the deposit mechanisms leading to the soot micro-structures. Particles have been classified according to their diameters in an experimental approach thanks to two different techniques : the electrostatic classification and the aerodynamic classification. Those methods allow the study the sensor behaviour to monodisperse aerosol between 60 and 150 nm.

Finally, a model for understanding the soot micro-structures construction have been developed. Soot particles are tracked until their deposit on the electrodes, which is coupled with the electric and aerodynamic fields computation. This approach is inspired by a model from the literature and is extended by a mechanism called dielectrophoresis, which provides a better understanding of the micro-structures construction. The influence of particle size was studied to explain trends observed experimentally.

NNT : *Communiqué le jour de la soutenance*

Adrien REYNAUD

Compréhension et modélisation des mécanismes de captation des aérosols par couplage des phénomènes aérodynamiques et électriques

Spécialité: Génie des procédés

Mots clefs : particules de suie, capteur résistif, aérosol, post-traitement des échappements

Résumé :

Les particules ultrafines émises par les moteurs thermiques ont un impact grave sur la santé. Depuis la norme Euro 3, la réglementation EOBD impose aux véhicules d'auto-diagnostiquer leurs propres organes de dépollution. Depuis la norme Euro 6b, le nombre de particules émises par les moteurs Diesel et essence est réglementé. Les capteurs résistifs permettent d'estimer le dépassement de seuil en concentration massique d'un aérosol de suie. Les suies se déposent entre les électrodes du capteur, créant des microstructures semblables à des ponts dont la résistance est mesurée. Leur robustesse et leur faible coût de fabrication en font de bons candidats pour le diagnostic embarqué des filtres à particules mais la concentration en nombre de particules n'est pas encore accessible.

L'objectif de ce travail est d'étudier les mécanismes de captation conduisant à la formation des microstructures de suie. Dans une approche expérimentale, les particules de suie ont été classifiées en fonction de leur taille grâce à deux techniques différentes : la classification électrostatique et la classification aérodynamique. Cela a permis d'étudier le comportement du capteur soumis à des particules entre 60 et 150 nm.

Enfin, un modèle de compréhension simule la construction des microstructures de suie. Les trajectoires des particules sont calculées et la modélisation de leur dépôt sur les électrodes est couplée avec le calcul des champs électrique et la dynamique des fluides. Cette méthode s'inspire d'un modèle de la littérature et l'enrichit d'un mécanisme appelé diélectrophorèse, expliquant mieux la formation des microstructures. L'influence de la taille des particules a été étudiée pour expliquer les tendances observées expérimentalement.

