



**HAL**  
open science

# Développement de capteurs à ondes élastiques de surface pour la mesure de la concentration des particules fines dans l'air : Application à la qualité de l'air

Lyes Djoumi

## ► To cite this version:

Lyes Djoumi. Développement de capteurs à ondes élastiques de surface pour la mesure de la concentration des particules fines dans l'air : Application à la qualité de l'air. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Bourgogne Franche-Comté, 2017. Français. NNT : 2017UBFCD086 . tel-03592874

**HAL Id: tel-03592874**

**<https://theses.hal.science/tel-03592874v1>**

Submitted on 1 Mar 2022

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

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

# SPIM

## Thèse de Doctorat

UFC

école doctorale **sciences pour l'ingénieur et microtechniques**  
UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ

# Développement de Capteurs à Ondes Élastiques de Surface pour la Mesure de la Concentration des Particules Fines dans l'Air

Application pour la qualité de l'air

 LYES DJOUMI



# SPIM

## Thèse de Doctorat

**UFC**

école doctorale **sciences pour l'ingénieur et microtechniques**  
**UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ**

N° 

X	X	X
---	---	---

THÈSE présentée par

**LYES DJOUMI**

pour obtenir le

Grade de Docteur de

l'Université de Franche-Comté

Spécialité : **Sciences pour l'ingénieur**

**Développement de Capteurs à Ondes Élastiques de  
Surface pour la Mesure de la Concentration des Particules**

**Fines dans l'Air**

Application pour la qualité de l'air

Soutenue publiquement le 22 juin 2017 devant le Jury composé de :

DOMINIQUE THOMAS	Rapporteur	Professeur à l'Université de Lorraine.
HUBERT PERROT	Rapporteur	Directeur de recherche à l'Université de Pierre et Marie Curie.
HÉLÈNE DEBEDA	Examinatrice	Maître de Conférence à l'Université de Bordeaux.
DANIEL HAUDEN	Examineur	Professeur à Université de Franche-Comté.
SYLVAIN BALLANDRAS	Examineur	Président-Directeur-Général de freq'n'sys.
VIRGINIE BLONDEAU-PATISSIER	Directrice de thèse	Maître de Conférence à l'Université de Franche Comté
PASCAL KALUZNY	Co-directeur de thèse	Président du groupe Tera-Environnement.



# SOMMAIRE

<b>Table des acronymes</b>	<b>1</b>
<b>Introduction générale</b>	<b>3</b>
<b>1 Généralités sur la détection de particules</b>	<b>7</b>
1.1 Définition et nomenclature . . . . .	7
1.2 Caractéristiques des Aérosols . . . . .	8
1.2.1 Concentration et distribution granulométrique . . . . .	8
1.2.2 Sources et composition des particules de pollution atmosphérique . . . . .	10
1.3 Physique des aérosols . . . . .	12
1.3.1 Fondamentaux de la mécanique des fluides . . . . .	12
1.3.1.1 Equation de Navier et Stokes pour des fluides continus . . . . .	12
1.3.1.2 Nombre de Reynolds . . . . .	13
1.3.2 Forces d'adhésion . . . . .	15
1.3.2.1 Forces de London-Van der Waals . . . . .	15
1.3.2.2 Forces électrostatiques . . . . .	16
1.3.3 Dynamique des particules : Interaction gaz / particules . . . . .	18
1.3.3.1 Libre Parcours Moyen . . . . .	18
1.3.3.2 Notion de Continuité . . . . .	18
1.3.3.3 Phénomène de Diffusion . . . . .	19
1.3.3.4 Force de friction . . . . .	20
1.3.3.5 Forces inertielles . . . . .	21
1.3.3.6 Autres forces . . . . .	22
1.3.3.7 Bilan des forces . . . . .	22
1.4 Notion de taille de particule . . . . .	23
1.4.1 Diamètre de Stokes . . . . .	24
1.4.2 Diamètre aérodynamique . . . . .	24

1.4.3	diamètre de mobilité équivalente . . . . .	24
1.4.4	Autres diamètres équivalents . . . . .	25
1.5	Les techniques de mesure des particules . . . . .	25
1.5.1	Méthodes optiques : compteur de particules . . . . .	26
1.5.1.1	Principe . . . . .	26
1.5.1.2	Avantages et Inconvénients des compteurs de particules . . . . .	26
1.5.2	Les méthodes gravimétriques . . . . .	27
1.5.3	Méthodes radiométriques . . . . .	32
1.5.4	Méthode Électrostatique . . . . .	33
1.6	Prélèvement des aérosols . . . . .	33
1.7	État de l'art des instruments sur le marché . . . . .	35
1.7.1	Le TEOM . . . . .	35
1.7.2	Les compteurs optiques commerciaux . . . . .	36
1.7.3	Les impacteurs en cascades commerciaux . . . . .	37
1.7.3.1	Récapitulatif des Instruments actuels . . . . .	40
1.8	Conclusion . . . . .	41
<b>2</b>	<b>Capteur à ondes élastiques de surface pour la mesure de particules</b>	<b>43</b>
2.1	Les ondes élastiques dans les solides . . . . .	43
2.1.1	Définitions . . . . .	44
2.1.1.1	Équation d'onde . . . . .	44
2.1.1.2	Les ondes acoustiques . . . . .	44
2.1.1.3	Les ondes élastiques . . . . .	45
2.1.2	Les ondes élastiques de volume . . . . .	47
2.1.3	Les ondes élastiques de surface . . . . .	48
2.1.3.1	Ondes de Rayleigh . . . . .	49
2.1.3.2	Ondes de Love . . . . .	50
2.2	Piézoélectricité . . . . .	50
2.2.1	Définition . . . . .	50
2.2.2	Caractéristiques des matériaux piézoélectriques . . . . .	52
2.2.3	Propagation des ondes élastiques dans les solides piézoélectriques . . . . .	53
2.3	Les capteurs à ondes élastiques . . . . .	54

2.3.1	Capteur à ondes élastiques de volume . . . . .	54
2.3.1.1	La microbalance à quartz . . . . .	55
2.3.1.2	FBAR . . . . .	57
2.3.1.3	HBAR . . . . .	58
2.3.2	Les capteurs à ondes élastiques de surface . . . . .	59
2.3.2.1	Les résonateurs SAW . . . . .	60
2.3.2.2	Les lignes à retard. . . . .	61
2.4	SAW et particules fines . . . . .	64
2.4.1	Hypothèse de travail . . . . .	65
2.4.2	Conception . . . . .	65
2.4.2.1	Choix du substrat . . . . .	65
2.4.2.2	Structure des transducteurs à peignes interdigités . . . . .	66
2.4.3	Fabrication des dispositifs . . . . .	68
2.4.3.1	Étapes technologiques de la fabrication de wafers . . . . .	68
2.4.3.2	Découpe des puces . . . . .	69
2.4.4	Montage des puces sur circuit imprimé . . . . .	70
2.5	Réponse aux particules . . . . .	70
2.5.1	Expériences de validation de la détection . . . . .	70
2.5.1.1	Présentation du banc . . . . .	71
2.5.1.2	Résultats et interprétation . . . . .	72
2.5.2	Influence de l'épaisseur du guide d'onde en silice sur la sensibilité . . . . .	74
2.6	Conclusion . . . . .	75
<b>3</b>	<b>Conception d'un système de séparation de particules PM2,5 et PM10</b> . . . . .	<b>77</b>
3.1	Choix d'un système de séparation . . . . .	77
3.2	Théorie des impacteurs . . . . .	78
3.3	Conception du système d'impaction . . . . .	81
3.3.1	Dimensionnement . . . . .	82
3.3.2	Simulations . . . . .	84
3.3.2.1	Méthodes des éléments finis . . . . .	84
3.3.2.2	Calcul fluide et suivi des particules . . . . .	85
3.3.2.3	Conclusion des simulations et choix de la configuration . . . . .	89

3.4	Entrée d'air . . . . .	90
3.4.1	Sur l'échantillonnage iso-cinétique . . . . .	90
3.4.2	Design de la cheminée d'entrée . . . . .	92
3.5	Intégration des capteurs SAW . . . . .	94
3.5.1	Conception des plaques d'impaction . . . . .	94
3.5.2	Distance entre l'orifice et la plaque . . . . .	95
3.5.3	Premier prototype P' AIR . . . . .	96
3.5.3.1	Plan du premier prototype . . . . .	97
3.5.3.2	Fabrication . . . . .	98
3.5.3.3	Exposition aux particules . . . . .	98
3.6	Évolutions du système . . . . .	102
3.6.1	Optimisation de la plaque d'impaction . . . . .	102
3.7	Conclusion . . . . .	104
<b>4</b>	<b>Mesure des particules et validation du dispositif</b>	<b>107</b>
4.1	Expériences en environnement intérieur . . . . .	107
4.1.1	Corrélation phase/concentration . . . . .	112
4.2	Expériences dans des conditions quasi-réelles . . . . .	114
4.3	Limites du système . . . . .	117
4.3.1	Phénomène de rebonds . . . . .	117
4.3.1.1	Mise en évidence expérimentale du phénomène . . . . .	117
4.3.1.2	Couche anti-rebond . . . . .	120
4.3.2	L'influence de la taille des particules sur la réponse des capteurs . . . . .	123
4.3.3	Saturation et Régénération . . . . .	126
4.4	Conclusion . . . . .	128
	<b>Conclusion générale</b>	<b>129</b>
	<b>Table des figures</b>	<b>138</b>
	<b>Liste des tables</b>	<b>139</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>155</b>
	<b>Remerciements</b>	<b>157</b>

## TABLE DES ACRONYMES

<b>PM</b>	Particle Matter . . . . .	3
<b>OMS</b>	Organisation Mondiale de la Santé . . . . .	3
<b>IARC</b>	International Agency for Research on Cancer . . . . .	3
<b>FEMTO-ST</b>	Franche Comté Électronique Mécanique Thermique et Optique - Sciences et Techniques . . . . .	4
<b>P'AIR</b>	Particle Atmospheric Intelligent Research . . . . .	4
<b>CIFRE</b>	Conventions Industrielles de Formation par la REcherche . . . . .	4
<b>SAW</b>	Surface Acoustic Waves . . . . .	4
<b>ISO</b>	International Organization for Standardization . . . . .	8
<b>PSL</b>	Polystyrène Latex . . . . .	9
<b>AED</b>	Aero-Dynamic Diameter . . . . .	24
<b>OPC</b>	Optical Particle Counters . . . . .	26
<b>ECI</b>	Electronic Cascade Impactor . . . . .	33
<b>ELPI</b>	Electrical Low Pressure Impactor . . . . .	33
<b>TEOM</b>	Tapered Element Oscillating Microbalance Analyser . . . . .	35
<b>QCM</b>	Quartz Crystal Microbalance . . . . .	38
<b>IEEE</b>	Institute of Electrical and Electronic Engineers . . . . .	52
<b>BAW</b>	Bulk Acoustic Waves . . . . .	54
<b>FBAR</b>	Film Bulk Acoustic wave Resonator . . . . .	54
<b>HBAR</b>	High overtone Bulk Acoustic wave Resonator . . . . .	54
<b>TSM</b>	Thickness Shear Mode . . . . .	55
<b>AlN</b>	Nitride d'aluminium . . . . .	57
<b>SMR</b>	Solidly Mounted Resonators . . . . .	57
<b>DRIE</b>	Deep Reactive Ion Etching . . . . .	57
<b>IDT</b>	Inter-Digitated Transducer . . . . .	59
<b>CoSyMA</b>	Composants et Systèmes Micro-Acoustiques . . . . .	61
<b>FWHM</b>	Full Width at Half Maximum . . . . .	61
<b>CTF</b>	Coefficient de Température de la Fréquence . . . . .	65
<b>MIMENTO</b>	Microfabrication pour la MEcanique, les Nanosciences, la Thermique et l'Optique 68	
<b>PECVD</b>	Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition . . . . .	69
<b>PCB</b>	Printed Circuit Board . . . . .	70
<b>SMA</b>	SubMiniature version A . . . . .	70

<b>LCE</b>	Laboratoire Chimie-Environnement .....	70
<b>RF</b>	Radio-Fréquence .....	94
<b>LRGP</b>	Laboratoire Réactions et Génie des Procédés .....	118
<b>PTFE</b>	Polytetrafluoroethylene.....	120
<b>PZT</b>	Titano-Zirconate de Plomb .....	128

# INTRODUCTION GÉNÉRALE

De nos jours, les problèmes liés à la pollution atmosphérique se posent de façon récurrente et croissante. Avec l'explosion industrielle et démographique, l'urbanisation et le nombre grandissant de voitures, la qualité de l'air que l'on respire s'en trouve dégradée de manière drastique. Parmi les divers polluants, les particules en suspensions ou les PM<sup>1</sup>, se distinguent comme étant les plus problématiques pour la santé. En effet, quelque soit leur composition chimique, ces particules sont capables de pénétrer dans le système respiratoire de l'homme, pouvant même atteindre les alvéoles pulmonaires, du fait de leur petite dimension. En particulier, les particules de matière de taille inférieure à 10 et 2,5 µm, respectivement appelées PM10 et PM2,5, peuvent entraîner de graves menaces sur la santé publique. Plusieurs études épidémiologiques ont ainsi montré le lien entre l'exposition à ce type de particules et certaines maladies chroniques respiratoires et cardio-pulmonaires [1–3]. Chez les enfants, en particulier, cela se traduit par une hausse du nombre de maladies allergiques [4]. Le taux élevé de particules a été également corrélé par diverses études à une augmentation de la mortalité pour différents pays du monde [5–8]. Ainsi, chaque année, plus de deux millions de décès prématurés peuvent être attribués aux effets de la pollution de l'air selon l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS<sup>2</sup>). En outre, dans le programme CAFE (Clean Air for Europe) en 2000, la commission européenne estimait à près de 300000 le nombre de décès anticipés liés à l'exposition aux niveaux de particules fines à travers les états membres [9]; ceci équivaut à une perte d'espérance de vie de 9 mois en moyenne dans l'ensemble du vieux continent. Ces effets sur la santé et sur l'environnement ont également des répercussions économiques; le coût sanitaire a été évalué à un montant compris entre 189 et 609 milliards d'euros par an en 2020 [10]. Une agence spécialisée de l'OMS, appelée Centre International de Recherche sur le Cancer (IARC<sup>3</sup>), a également classé en 2013 la pollution de l'air extérieur, et plus spécifiquement les particules fines présentes dans l'air, comme étant cancérigène [11]. Actuellement, le niveau d'alerte défini en France est de 80 µg/m<sup>3</sup> pour les PM10 en moyenne journalière [12], mais à ce jour, il n'a pas été mis en évidence de seuil en dessous duquel ces particules seraient complètement inoffensives pour la santé. Même des faibles concentrations peuvent être associées à des effets néfastes tels que des maladies cardiaques ou respiratoires selon l'OMS[13].

---

1. Particle Matter

2. Organisation Mondiale de la Santé

3. International Agency for Research on Cancer

## CONTEXTE

Face à des alertes à la pollution de plus en plus fréquentes dans certaines régions de France, le Ministère de l'Écologie a lancé en 2010 un "Plan Particules" [14] dans le cadre de la loi Grenelle du 3 août 2009 [15]. L'exposition aux polluants aériens échappant au contrôle individuel, il paraissait nécessaire pour les autorités publiques d'agir au niveau régional, national et même international. Le plan d'action prévoit un certain nombre de mesures à adopter dans différents secteurs dans le but de réduire les émissions de particules ; ces mesures nécessitant des changements de comportements de la société à tous les niveaux. En particulier, un effort scientifique semble tout-à-fait indispensable dans le but d'améliorer les connaissances sur la mesure et la modélisation de ces pollutions. Pour cela, il est capital de posséder des outils de mesure performants et peu coûteux permettant d'obtenir une idée plus précise du taux de pollution dans les villes. C'est dans ce contexte que s'inscrit le projet P' AIR<sup>4</sup>. Avec un budget de 2,3 M€ sur trois ans, ce programme repose sur une volonté commune de six partenaires, académiques et industriels, d'apporter des réponses innovantes aux problématiques de pollution atmosphérique. Porté par la société Ecologicsense, le but de ce projet est de développer un réseau composé de plusieurs capteurs de particules fines miniaturisés, de grande sensibilité, peu consommateurs en énergie et à faible coût. Ces capteurs permettront d'obtenir une cartographie urbaine, précise et en temps réel de la zone d'étude grâce à système de modélisation de pollution de nouvelle génération et à haut niveau de fiabilité. Actuellement, de nombreux outils de détection et de mesure existent et sont commercialisés, mais ceux-ci présentent souvent les inconvénients d'être encombrants, onéreux et faisant appel à des technologies dont la mise en œuvre reste longue et contraignante. Dans cette perspective, les dispositifs à ondes élastiques apparaissent comme digne d'intérêt. Plus particulièrement, les dispositifs à ondes élastiques de surface appelées SAW<sup>5</sup>, sont déjà très utilisés en tant que capteurs dans diverses applications. Cela s'explique par leur sensibilité, leur taille réduite et leur coût de fabrication ; celle-ci étant effectuée en salle blanche par microfabrication collective. Ils trouvèrent notamment un vaste champ d'applications dans divers domaines en plein essor dans les années 80 notamment en tant que capteurs physiques (contraintes, déformation, pression, température, couple, gyromètre), chimiques ou biologiques. En outre, les dispositifs SAW sont largement utilisés en tant que filtres dans la téléphonie mobile.

Cette thèse de type CIFRE<sup>6</sup>, réalisée en partenariat entre le laboratoire FEMTO-ST<sup>7</sup> et l'entreprise Ecologicsense basée à Rousset, s'inscrit dans le cadre de ce projet P' AIR. Elle représente le cœur même du projet car l'objectif principal est le développement de la partie sensible du dispositif. Il s'agit plus précisément de mettre au point un système innovant basé sur une technologie acoustique dans le but de mesurer la pollution particulaire dans l'air. Le principe est d'utiliser la technologie des ondes élastiques de surface, connue depuis des années et faisant partie des thématiques principales de FEMTO-ST, pour la mesure précise et en temps réel des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub>.

---

4. Particle Atmospheric Intelligent Research

5. Surface Acoustic Waves

6. Conventions Industrielles de Formation par la REcherche

7. Franche Comté Électronique Mécanique Thermique et Optique - Sciences et Techniques

## PLAN DE LA THÈSE

Ce manuscrit se divise en quatre chapitres. Le premier est consacré aux généralités concernant la caractérisation des aérosols et la mesure des particules. Les notions et termes de base y sont définis avant la présentation des phénomènes physiques régissant le comportement des particules dans les aérosols. Les fondamentaux de la mécanique des fluides à travers les équations de Navier et Stokes seront également abordés ainsi que les forces responsables de l'adhésion des particules entre elles et/ou avec les surfaces en contact. Les phénomènes responsables du mouvement des particules dans les aérosols seront également étudiés. Toutes ces notions théoriques sont nécessaires à la compréhension des lois physiques permettant d'expliquer les différentes technologies et méthodes de mesure utilisées pour la caractérisation des aérosols. La dernière partie de ce chapitre est dédiée à un tour d'horizon concis des différents instruments et appareils actuellement utilisés pour le contrôle et la mesure des particules de pollution atmosphérique ; cet état de l'art permettant de positionner la technologie à base de capteurs à ondes élastiques de surface développée dans cette thèse par rapport au marché actuel.

Le développement de ces capteurs dédiés à la mesure des particules de pollution atmosphérique fera l'objet du second chapitre. Celui-ci débutera par des généralités sur les ondes élastiques et leur propagation dans les solides. Ensuite, les principes de base de la piézoélectricité y seront présentés permettant de mieux comprendre les mécanismes de génération des ondes élastiques ainsi que leur propagation dans les cristaux piézoélectriques. Puis, les capteurs à ondes élastiques de surface, ainsi que leurs différentes étapes de conception et de fabrication seront détaillées. À la fin du chapitre, sera démontrée par expérience la capacité de ces capteurs SAW à réaliser la détection en temps réel des particules fines dans l'air.

Ces capteurs SAW ne sont pas intrinsèquement sélectifs aux espèces adsorbées sur leur surface sensible. Ils ne sont donc pas en mesure de discriminer les particules selon leur taille. Or, dans le cadre du projet P'AIR, l'objectif est de concevoir un système de mesure et de différenciation entre les particules de 2,5 et 10  $\mu\text{m}$ . Le troisième chapitre sera, de ce fait, consacré à la conception d'un tel système de séparation. Tout d'abord, seront présentées les caractéristiques des systèmes de filtration et classificateurs inertiels existants. Cette prospection étant nécessaire au choix du système le plus adapté à notre application ; en l'occurrence un impacteur en cascade. En commençant par les aspects théoriques, l'approche ayant permis la conception de ce système sera détaillée. L'aspect innovant de cette thèse se situe au niveau de l'intégration de la technologie SAW avec celle des impacteurs, les problématiques liées à l'assemblage de ces deux composants seront le cœur de ce chapitre. Après plusieurs étapes d'optimisation, il a ainsi été possible de concevoir et fabriquer un prototype fonctionnel.

Le dernier chapitre sera dédié à la validation de son fonctionnement et à l'évaluation de ses performances. La capacité du système à séparer les particules selon leur taille sera étudiée, dans un premier temps, à travers la réponse des capteurs, puis en analysant leur surface par microscopie optique ; l'étude de la réponse des capteurs étant faite par comparaison entre leur signal de phase et la concentration des particules émises. Dans la seconde partie de ce chapitre, les limites du système seront présentées, notamment les problèmes rencontrés en présence de particules grossières où des phénomènes de rebonds peuvent apparaître. En outre, le couplage entre les particules déposées et

la surface sensible du capteur sera étudié. Pour finir, des solutions permettant de corriger ces difficultés seront proposées en fin de chapitre.

L'objectif global des travaux, présentés tout au long de ce manuscrit, vise à l'adaptation de la technologie des ondes élastiques de surface à la détection des particules dans l'air. Ces travaux ont permis la conception d'un système de mesure en temps réel innovant aboutissant à la rédaction puis le dépôt d'un brevet d'invention en avril 2016.

# GÉNÉRALITÉS SUR LA DÉTECTION DE PARTICULES

Ce premier chapitre est dédié aux généralités concernant la caractérisation des aérosols et la mesure de particules. Nous commencerons par définir les notions et les termes de base puis nous étudierons, par la suite, les phénomènes physiques régissant le comportement des particules dans les aérosols. Cela nous amènera à présenter les fondamentaux de la mécanique des fluides à travers les équations de Navier et Stokes ainsi que les forces responsables de l'adhésion des particules entre elles et avec les surfaces les entourant. Nous étudierons également les phénomènes responsables du mouvement des particules dans les aérosols. Toutes ces notions théoriques sont nécessaires à la compréhension des lois physiques permettant par la suite d'expliquer les différentes technologies et méthodes de mesure utilisées pour la caractérisation des particules en suspension. En particulier, ces équations théoriques seront utiles dans le chapitre 3 pour la conception d'un système de séparation de particules. En outre, avant de débiter le projet, un état de l'art sur la détection de particules de pollution atmosphérique a été effectué permettant de présenter de manière concise les différents instruments et appareils utilisés actuellement pour la mesure des particules présentes dans l'atmosphère. Nous démontrons, en conclusion de ce chapitre, la pertinence de la technologie développée dans cette thèse par rapport à celles qui existent actuellement.

## 1.1/ DÉFINITION ET NOMENCLATURE

Le terme aérosol est utilisé pour définir des particules en suspension dans un gaz [16]. Il peut s'agir de particules solides ou liquides de natures chimiques diverses. Ce terme vient de celui d'hydrosol désignant des particules solides en suspension dans un liquide [17]. L'aérosol est donc composé de deux phases distinctes : le gaz et les particules. Dans le cadre de ce travail qui concerne principalement la pollution atmosphérique, l'espèce gazeuse étudiée sera l'air.

En outre, le terme aérosol peut s'appliquer à différents phénomènes pouvant être observés dans la vie de tous les jours. A titre d'exemple, la poussière est un aérosol composé de particules solides issues de la désintégration d'un matériau. De même, le brouillard est un aérosol composé quant-à-lui de gouttelettes liquides en suspension. Ces gouttelettes se forment par condensation de vapeurs ou par nébulisation. La fumée est également un type d'aérosol issu de la combustion de matériaux

ou de la condensation de vapeur saturée. Il existe également des aérosols de source biologique comme les virus en suspension, les bactéries ou encore le pollen ; dans ce cas nous parlons de Bioaerosol.

Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes intéressés aux aérosols composés de particules de matière PM2,5 et PM10, qui sont respectivement les particules dont la taille est inférieure à 2,5 et 10  $\mu\text{m}$ . Les PM10 sont les particules respirables, elles sont retenues au niveau du nez et des voies aériennes supérieures [18]. Parmi les particules PM10, celles de taille supérieure à 2,5  $\mu\text{m}$  sont appelées “particules grossières”. En revanche, celles plus petites que 2,5  $\mu\text{m}$  (PM2,5) sont appelées “particules fines” [19]. Ces dernières sont capables de pénétrer profondément dans l’appareil respiratoire jusqu’aux alvéoles pulmonaires. Les particules de taille inférieure à 1  $\mu\text{m}$  sont communément appelées des particules très fines ou PM1. Pour leur part, les particules de taille inférieure à 100 nm sont qualifiées de particules ultra-fines ou de nanoparticules.

## 1.2/ CARACTÉRISTIQUES DES AÉROSOLS

Les aérosols peuvent être caractérisés en fonction de diverses propriétés. En fonction du domaine d’application, les caractéristiques recherchées peuvent varier. Nous distinguons deux approches fondamentales :

- La concentration et la distribution granulométrique des particules :

Dans le cadre de la qualité de l’air, que ce soit pour estimer le taux de pollution atmosphérique ou la qualité de l’air intérieur, la concentration particulaire d’un aérosol est la principale caractéristique recherchée. Cette concentration est toujours couplée à une certaine gamme de taille de particules, en l’occurrence les PM1, PM2,5 ou PM10.

- La nature et la composition chimique des particules :

Cette approche est privilégiée dans l’étude de la toxicité d’un aérosol où l’intérêt porte sur la nature chimique des particules le composant. En outre, la composition chimique permet de tracer l’origine des particules. Celle-ci est fondamentale dans l’étude des sources d’émission, principalement dans le but de les réduire de manière efficace.

Ces deux approches sont différentes mais pas indépendantes. En effet, il paraît évident que selon la quantité des particules, c’est-à-dire leur concentration dans l’air, le niveau de toxicité change. En outre, comme nous le verrons plus loin dans ce manuscrit, les techniques de mesure utilisées pour caractériser les aérosols peuvent dépendre de la nature et de la composition chimique de ces derniers.

### 1.2.1/ CONCENTRATION ET DISTRIBUTION GRANULOMÉTRIQUE

La concentration définit la distribution spatiale des particules dans un aérosol et peut s’exprimer soit en nombre de particules par unité de volume, soit en masse par unité de volume. La première forme est en général utilisée, selon la norme ISO<sup>1</sup>14644-1 [20], pour décrire le niveau de “propreté” des salles blanches (cf. tableau 1.1).

---

1. International Organization for Standardization

Classe	Concentration des particules (particules / m <sup>3</sup> )					
	≥ 0,1 μm	≥ 0,2 μm	≥ 0,3 μm	≥ 0,5 μm	≥ 1 μm	≥ 5 μm
ISO 1	10	2	1	0	0	0
ISO 2	100	24	10	4	0	0
ISO 3	1 000	237	102	35	8	0
ISO 4	10 000	2 370	1 020	352	83	3
ISO 5	100 000	23 700	10 200	3 520	832	29
ISO 6	1 000 000	237 000	102 000	35 200	8 320	293
ISO 7	x	x	x	352 000	83 200	2 930
ISO 8	x	x	x	3 520 000	832 000	29 300
ISO 9	x	x	x	35 200 000	8 320 000	293 000

TABLE 1.1 – Classification des salles blanches selon la norme ISO14644-1 [20].

La deuxième forme est plutôt utilisée dans l'étude de la qualité de l'air où la concentration des particules est la caractéristique fondamentale permettant d'estimer le taux de pollution. Dans ces applications, concernant la pollution atmosphérique et la qualité de l'air intérieur, la concentration est exprimée en masse par unité de volume. Dans ce cas, l'unité la plus répandue est le  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Dans un environnement faiblement pollué, aussi bien en intérieur qu'en extérieur, la concentration est généralement en dessous de  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  alors que dans des environnements plus pollués, elle peut atteindre facilement 100 voire  $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$  [21].

Les instruments de mesure de concentration destinés à la qualité de l'air doivent donc être capables de viser des gammes de concentrations comprises entre 0 et  $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Dans le cas du projet P' AIR, la gamme définie va de 0 à  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

En général, les aérosols naturels sont composés de particules de différentes tailles. La distribution granulométrique renseigne sur la répartition des tailles de particules contenues dans un aérosol. Ce taux est généralement exprimé en nombre de particules présentes dans un volume donné [16]. Une des informations importantes déductibles directement à partir de la distribution granulométrique est la **taille moyenne**. Cette notion de taille de particules sera décrite précisément dans la section 1.4.

La distribution granulométrique peut être de forme normale, c'est-à-dire gaussienne (cf. figure 1.1(a)), ou logarithmique (cf. figure 1.1(b)). Les distributions de type normale sont rencontrées dans les aérosols artificiels composés, par exemple, de particules synthétisées en laboratoire comme les PSL<sup>2</sup>. Ce type d'aérosol est dit "mono-disperse" dans le cas où le paramètre de déviation  $\sigma/\bar{d}_p$  est inférieure à 10 ou 20 % [22],  $\sigma$  étant la déviation standard et  $\bar{d}_p$  la taille moyenne des particules dans l'aérosol. Dans les aérosols atmosphériques, nous retrouvons en général une distribution de type logarithmique avec un nombre de particules fines plus important que celui des particules grossières. Selon le modèle de Whitby [23], la distribution granulométrique des particules dans l'atmosphère se décompose en trois modes. Le mode de nucléation, pour les particules de diamètre compris entre 0,01 et 0,1  $\mu\text{m}$ , le mode d'accumulation pour les particules dans l'intervalle [0,1  $\mu\text{m}$ , 1  $\mu\text{m}$ ] et le mode grossier qui concerne les particules de taille supérieure à 1  $\mu\text{m}$ .

---

2. Polystyrène Latex

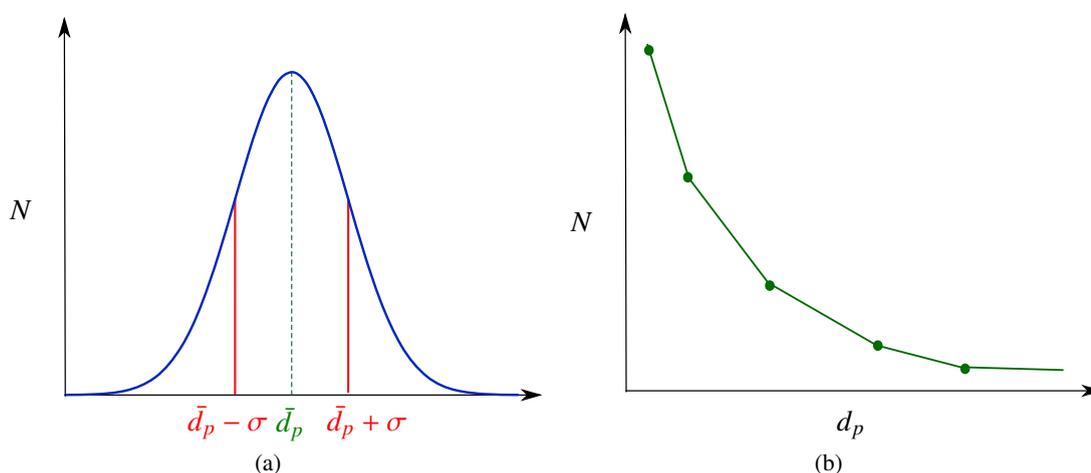


FIGURE 1.1 – Distribution normale (a) et logarithmique (b).

Pour obtenir la distribution granulométrique des particules dans un aérosol, plusieurs instruments utilisant des technologies différentes existent notamment les compteurs optiques et les impacteurs en cascade. Dans le cadre du projet P'AIR, nous avons été amenés à étudier les différences entre ces diverses technologies. Le résultat de ce travail sera l'objet de la section 1.5 de ce chapitre.

### 1.2.2/ SOURCES ET COMPOSITION DES PARTICULES DE POLLUTION ATMOSPHÉRIQUE

Dans le cadre de nos travaux, il nous a paru pertinent d'étudier les sources de la pollution atmosphérique. Dans la figure 1.2 est présentée une cartographie de la pollution particulaire PM10 de la ville de Marseille effectuée grâce aux prélèvements de l'association Air PACA®. Cette carte montre les zones où le taux de pollution est maximal correspondent aux grands axes routiers de la ville. En effet, ces données correspondent aux résultats statistiques données par Air PACA® (cf. figure 1.3) indiquant que le trafic automobile est une des sources principales de ce type de pollution.

La nature chimique des particules composant les aérosols dépend fortement de la source d'où les particules sont issues. Dans les villes (air urbain), la source principale étant très largement induite par le trafic automobile, la majorité des particules PM2,5 et PM10 émises dans l'air sont des espèces organiques composées de carbone élémentaire (CE) et de carbone organique (OC). Dans les zones industrielles, d'autres types de particules peuvent être rencontrés. Dans les carrières par exemple, les particules de silice (sable) peuvent être présentes à des niveaux élevés. Le diagramme de la figure 1.4 représente la composition chimique de particules prélevées en région parisienne au niveau de zones de trafic automobile. Nous pouvons observer que les composés organiques dans leur ensemble représentent près de 70% des particules prélevées. Le trafic automobile contribue très largement à ces espèces organiques mais Ghersi et al [24] ont démontré également que le chauffage au bois entraînait des émissions particulaires non négligeables dans les zones urbaines éloignées des axes routiers. Lenschow et al. ont aussi souligné l'apport du chauffage domestique dans l'émission de particules dans la ville de Berlin [25].

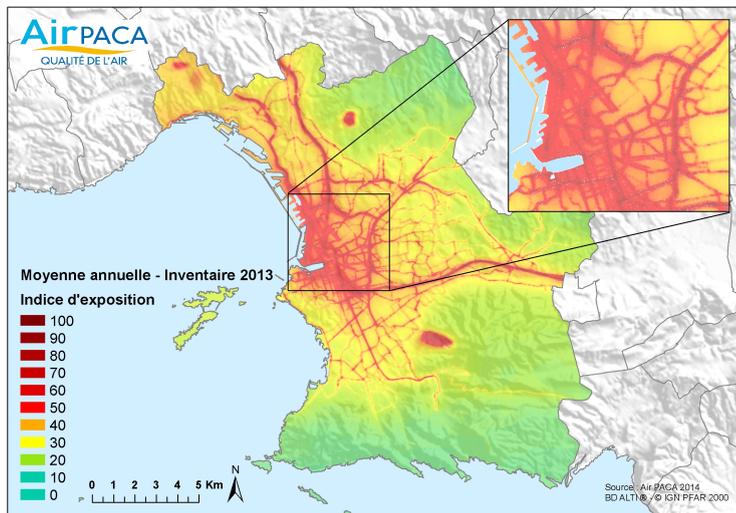


FIGURE 1.2 – Cartographie de la moyenne annuelle de pollution particulaire (PM10) de la ville de Marseille [26].

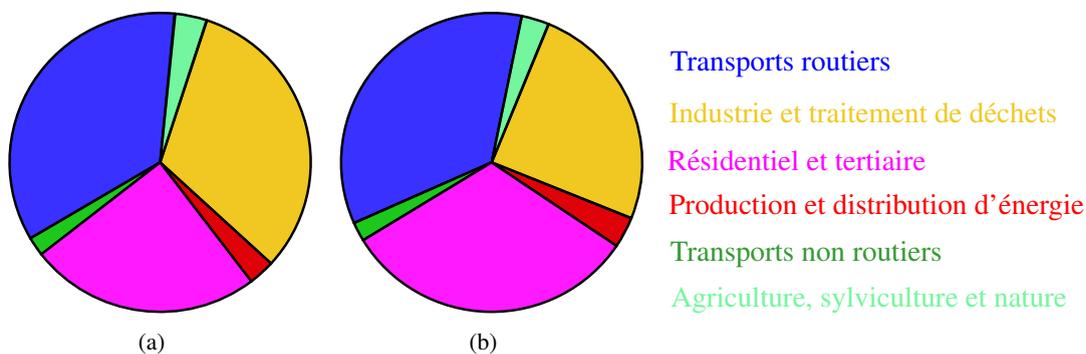


FIGURE 1.3 – Source de particules PM10 (a) et PM2,5 (b) émises dans la région Provence-Alpes-Côte-d'Azur lors de l'année 2013 mesurées par Air PACA®[27].

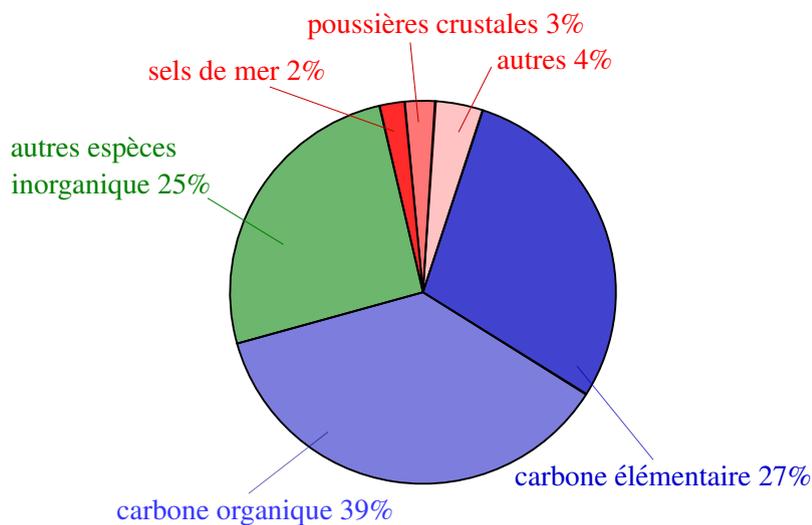


FIGURE 1.4 – Composition des particules PM2,5 prélevées dans les zones de trafic en région parisienne [24].

### 1.3/ PHYSIQUE DES AÉROSOLS

L'étude des aérosols revient à étudier la physique des particules ainsi que celle du fluide dans lequel elles sont suspendues, en l'occurrence l'air. Il s'agit surtout de comprendre comment interagissent ces éléments entre eux. Dans cette section, le problème est décomposé en trois étapes :

- **Les fondamentaux de la mécanique des fluides**  
Cela revient à étudier le comportement mécanique du fluide sans prendre en considération les particules.
- **L'interaction particule / particule et l'interaction surface / particule :**  
Les particules adhèrent les unes aux autres ainsi qu'aux surfaces avec lesquelles elles entrent en contact. Comprendre ces mécanismes est capital pour avoir une vue sur les phénomènes d'adhésion, de détachement et de rebonds.
- **L'interaction fluide / particule :**  
Dans l'ensemble, le comportement dynamique des particules est régi par le fluide dans lequel elles sont suspendues. Les particules suspendues en revanche ont peu d'influence sur le mouvement de l'air pour les concentrations considérées dans le cadre de ce travail (0-200  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

Pour des raisons de simplification, dans toute cette section, les particules étudiées seront considérées comme des sphères de diamètre  $d_p$ . Nous introduirons ensuite la notion de **diamètre équivalent** dans la section 1.4 pour pouvoir inclure l'ensemble des particules constituant les aérosols de pollution atmosphérique.

#### 1.3.1/ FONDAMENTAUX DE LA MÉCANIQUE DES FLUIDES

Un fluide est une substance qui se déforme de manière continue lorsqu'on lui applique des contraintes de cisaillement. Les liquides, les gaz et les plasmas sont tous des fluides. Ceux-ci sont principalement caractérisés par leur viscosité dynamique, notée  $\eta$ , correspondant à leur capacité à résister aux contraintes de cisaillement. Dans l'étude des aérosols, le fluide en question est l'air.

##### 1.3.1.1/ EQUATION DE NAVIER ET STOKES POUR DES FLUIDES CONTINUS

Le mouvement d'un fluide est gouverné par les équations de Navier et Stokes [28], qui sont elles-mêmes dérivées de la seconde loi de Newton [29]. Dans le cas des fluides newtoniens, la relation entre la vitesse locale du flux  $u$  et la pression  $p$  est donnée par l'équation 1.1 :

$$\rho \frac{\partial u}{\partial t} + \rho u \cdot \nabla u = -\nabla p + \eta \Delta u + f \quad (1.1)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho u) = 0 \quad (1.2)$$

L'opérateur  $\Delta$  est le laplacien défini comme  $\Delta = \nabla^2$

$$\text{L'opérateur } \nabla \text{ est défini tel que : } \begin{cases} \nabla f = \vec{\text{grad}} f = \begin{bmatrix} \frac{\partial f}{\partial x} \\ \frac{\partial f}{\partial y} \\ \frac{\partial f}{\partial z} \end{bmatrix} \\ \nabla \cdot F = \text{div } F = \frac{\partial F}{\partial x} + \frac{\partial F}{\partial y} + \frac{\partial F}{\partial z} \end{cases}$$

L'équation 1.1 représente la conservation de la quantité de mouvement, dérivée de la seconde loi de Newton. Le terme situé à gauche dans l'équation représente les forces inertielles,  $\nabla p$  les forces de pression,  $\eta \Delta u$  les forces de viscosité et  $f$  rassemble toutes les forces extérieures. L'équation 1.2, appelée équation de continuité, représente quant-à-elle la conservation de la masse.

Étant dans le cas d'un fluide non compressible dont la densité ne varie pas dans le temps, nous obtenons donc  $\frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$ . L'équation 1.2 devient alors :

$$\nabla \cdot u = 0 \quad (1.3)$$

### 1.3.1.2/ NOMBRE DE REYNOLDS

Soient  $U$ ,  $L$  et  $T$  étant respectivement la vitesse, la longueur et la durée caractéristique du cas à traiter, la formule 1.1 peut être normalisée en introduisant les nouvelles variables adimensionnelles  $\bar{u} = u/U$ ,  $\bar{p} = \frac{p}{\eta U/L}$  et  $\bar{t} = t/T$  ; l'équation 1.1 devient alors :

$$Re \left( \frac{1}{S_{tr}} \frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{t}} + \bar{u} \cdot \nabla' \bar{u} \right) = -\nabla' \bar{p} + \Delta' \bar{u} + f, \quad (1.4)$$

avec  $\nabla' = L \nabla$ ,  $\Delta' = L \Delta$ ,  $Re = \frac{\rho U d}{\eta}$  le nombre de Reynolds [30] et  $S_{tr} = \frac{T U}{L}$  le nombre de Strouhal.

Le nombre de Reynolds  $Re$  est défini comme le ratio entre les forces inertielles et les forces de viscosité dans un fluide.  $Re$  est d'une grande importance dans la détermination des conditions d'écoulement du fluide notamment pour la différenciation entre les flux laminaires et turbulents. Dans le tableau 1.2 sont résumés les différents régimes d'écoulement en fonction du nombre de Reynolds.

Nombre de Reynolds	Régime d'écoulement
$Re \ll 1$	Régime de Stokes
$1 < Re < 2000$	Régime laminaire
$2000 < Re < 4000$	Régime transitoire
$Re > 4000$	Régime turbulent

TABLE 1.2 – Nombre de Reynolds et régimes correspondants [31].

### Régime laminaire

Lorsque ce sont les forces de friction qui dominent, le flux est dit laminaire. Dans ce cas, les lignes de flux sont parallèles les unes aux autres. L'écoulement se produit pour les nombres de Reynolds  $Re < 2000$ . Dans le cas d'un flux dans un tube cylindrique, le flux laminaire est appelé "écoulement de Poiseuille"[32]. Ce type d'écoulement est illustré dans la figure 1.5(a). La vitesse du flux dans le cylindre de rayon  $R$  est alors donnée par l'équation 1.5.

$$u(r) = \left( \frac{R^2}{4\eta} \cdot \frac{dP}{dx} \right) \left( 1 - \frac{r^2}{R^2} \right) \quad (1.5)$$

La vitesse maximale correspond au centre du cylindre  $r = 0$  est donnée par :

$$u_{max} = \frac{R^2}{4\eta} \cdot \frac{dP}{dx} \quad (1.6)$$

De l'équation 1.5, nous pouvons déduire que la vitesse du flux est nulle sur la surface interne du cylindre  $u(R) = 0$ .

### Régime turbulent

Quand le nombre de Reynolds est plus grand ( $Re > 4000$ ), les forces inertielles dominent et le flux devient "chaotique", le régime est dans ce cas appelé turbulent et est illustré dans la figure 1.5(b).

### Régime transitoire

Il correspond à la phase intermédiaire entre le régime laminaire et turbulent. Le nombre de Reynolds, dans ce cas, est compris entre 2000 et 4000.

### Régime de Stokes

Appelé aussi écoulement rampant, ce régime existe lorsque les forces inertielles sont négligeables par rapport à celles de friction. Il correspond aux nombres de Reynolds très petits,  $Re \ll 1$ .

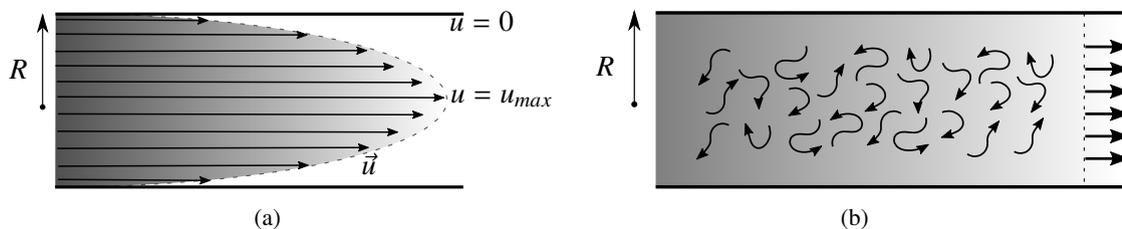


FIGURE 1.5 – (a) : régime laminaire ou écoulement de Poiseuille. (b) : régime turbulent.

### 1.3.2/ FORCES D'ADHÉSION : INTERACTION PARTICULE/PARTICULE ET PARTICULE/SURFACE

Les particules dans un aérosol adhèrent les unes aux autres en formant des agrégats. Cette propriété est spécifique aux aérosols et constitue une des plus grandes différences entre les particules fines suspendues dans l'air et les molécules d'un gaz. Les particules adhèrent aussi aux surfaces avec lesquelles elles entrent en contact : parois des tubes, instruments de mesure ... etc. Dans cette partie, l'interaction du fluide avec les particules n'est pas prise en compte. Il s'agit dans un premier temps d'étudier l'interaction des particules entre elles ainsi qu'avec les surfaces environnantes. Ces forces d'adhésion jouent un rôle déterminant dans l'étude des aérosols car elles influent directement sur deux points importants :

- Le collage des particules sur les instruments d'échantillonnage et de mesure.
- La formation d'agrégats induisant le changement de la taille des particules et donc de leur comportement dynamique.

Dans cette section, deux types de forces sont présentées : les forces de Van der Waals et les forces électrostatiques.

#### 1.3.2.1/ FORCES DE LONDON-VAN DER WAALS

Les forces de London-Van der Waals sont dues à la génération instantanée de dipôles engendrée par la fluctuation aléatoire du nuage d'électrons autour d'un nucléon [33]. Par conséquent, des dipôles complémentaires créés entre des matériaux voisins attirent les surfaces les unes aux autres. L'énergie d'interaction entre les molécules a été formulée en 1930 par London [34]. La formulation initiale est donnée par l'équation 1.7.

$$V = \frac{-4 \alpha^2 h_c}{3 r^2 \lambda_i}, \quad (1.7)$$

où  $\alpha$  est la polarisabilité de l'atome et  $\frac{h_c}{\lambda_i}$  son énergie d'ionisation

À partir de l'énergie d'interaction, Hamaker a fait le calcul d'intégration dans son article de 1937 [35] pour le cas de deux particules sphériques de diamètres  $R_1$  et  $R_2$ , la formulation générale est donnée par l'équation 1.8.

$$V_A = -\frac{A_{sys}}{6} \left( \frac{2R_1R_2}{r^2 - (R_1 + R_2)^2} + \frac{2R_1R_2}{r^2 - (R_1 - R_2)^2} + \ln \frac{r^2 - (R_1 + R_2)^2}{r^2 - (R_1 - R_2)^2} \right), \quad (1.8)$$

$A_{sys}$  étant la constante de Hamaker [36] du système des particules baignant dans le fluide. Celle-ci, donnée par la formulation de Lifschitz [37], dépend des caractéristiques des atomes (polarisabilité et énergie d'ionisation) ainsi que leur concentration dans le matériau [38].

Pour les petites distances entre particules  $r \ll R_i$  (cf. figure 1.6 (a)), l'équation 1.8 est généralement simplifiée sous la forme :

$$V_A = -\frac{A_{sys}R_1R_2}{6r(R_1 + R_2)} \quad (1.9)$$

À partir de là, la force associée peut être dérivée  $F_{vdw} = \frac{dV_A}{dr}$ . Le module de la force de Van der Waals entre deux particules sphériques de rayons  $R_1$  et  $R_2$  sera finalement donné par l'équation 1.10.

$$F_{vdw} = \frac{A_{sys}R_1R_2}{6(R_1 + R_2)r^2} \quad (1.10)$$

Dans le cas d'une particule sphérique de diamètre  $d_p$  interagissant avec une surface plane (cf. figure 1.6 (b)), la force de Van der Waals correspondante est dérivée à partir de l'équation 1.9 en mettant  $R_2 \gg R_1$  et  $d_p = 2R_1$ . Le résultat est donné dans l'équation 1.11

$$F_{VdW} = A_{sys} \frac{d_p}{12r^2} \quad (1.11)$$

Sur la figure 1.6 sont représentés les deux cas de figures :

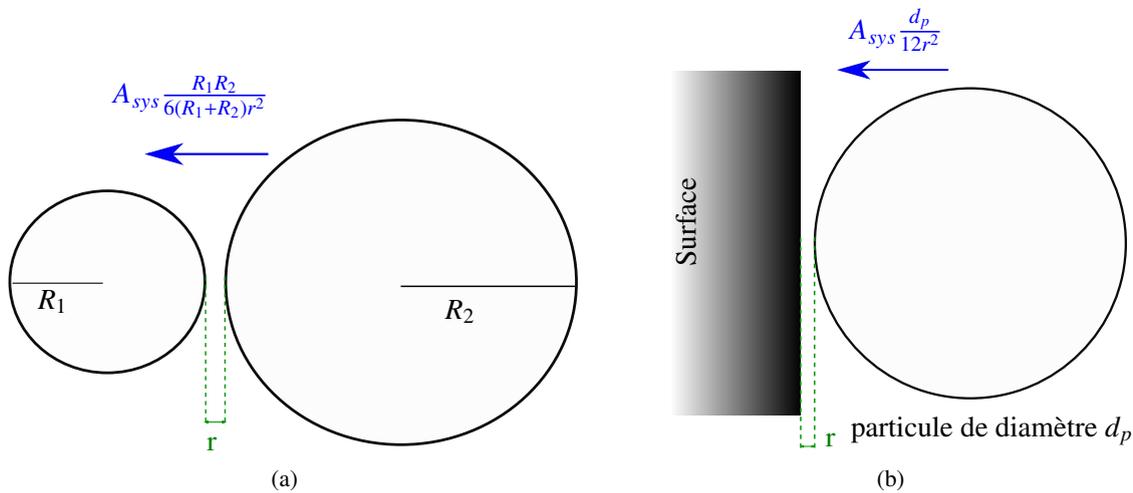


FIGURE 1.6 – Schéma représentatif de la force Van der Waals. (a) : formation d'agrégats lors de l'interaction de deux particules, (b) : collage d'une particule à une surface.

Les forces de Van der Waals sont dominantes pour des courtes distances, c'est-à-dire quelques nanomètres [39]. Elles sont grandes en surface des particules et tendent vers zéro rapidement dans le volume, celles-ci étant inversement proportionnelles au carré de la distance.

### 1.3.2.2/ FORCES ÉLECTROSTATIQUES

Toutes les particules présentes dans l'atmosphère sont chargées du fait de la présence d'ions et des collisions avec ceux-ci. La distribution des charges est toutefois uniforme à moyenne nulle. Pour cette raison, les forces électrostatiques ont relativement peu d'importance sur le mouvement général de l'aérosol mais sont déterminantes pour expliquer le collage de particules individuelles sur les surfaces des instruments ainsi que l'adhésion des particules entre-elles. Les forces électrostatiques les plus importantes sont les forces Coulombiennes. Celles-ci sont nommées d'après le physicien français Charles-Augustin Coulomb.

Coulomb a formulé sa loi fondamentale de l'électrostatique en 1785 [40]. Les forces Coulombiennes interviennent dans le cas de particules chargées. Les particules de charges opposées sont attirées les unes vers les autres alors que celles de même signe se repoussent (cf. figure 1.7). Comme le montre l'équation 1.12, l'intensité de la force est inversement proportionnelle au carré de la distance entre les particules.

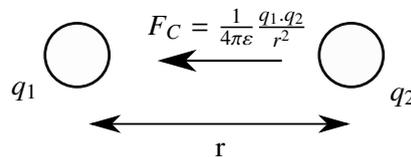


FIGURE 1.7 – Représentation schématique de la force électrostatique entre deux particules chargées.

$$F_C = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{q_1 \cdot q_2}{r^2} \quad (1.12)$$

La permittivité diélectrique  $\epsilon$  est le produit de la permittivité relative  $\epsilon_r$  et celle du vide  $\epsilon_0$  :  $\epsilon = \epsilon_r \cdot \epsilon_0$ ,  $q_1$  et  $q_2$  sont les charges des particules et  $r$  la distance entre les particules. Dans le cas d'une interaction particule/surface (cf. figure 1.8), l'équation 1.12 devient :

$$F_C = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{q_p \cdot q_s}{(r + d_p)^2} \quad (1.13)$$

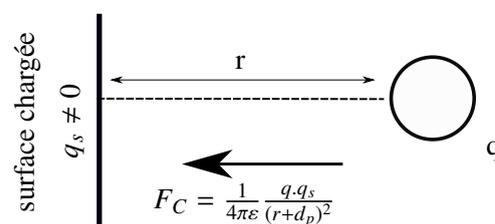


FIGURE 1.8 – Représentation schématique de la force électrostatique entre une particule et une surface chargées.

L'équation 1.13 est valide dans le cas d'une surface chargée  $q_s$ . Si ce n'est pas le cas ( $q_s = 0$ ), la force de Coulomb correspondante est appelée force d'image électrique (cf. figure 1.9), celle-ci est donnée par l'équation 1.14.

$$F_C = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{q^2}{(2r + d_p)^2} \quad (1.14)$$

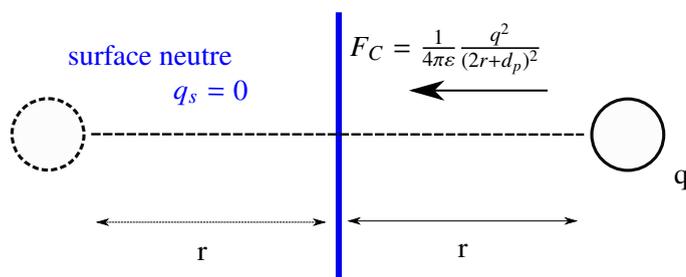


FIGURE 1.9 – Représentation schématique de la force d’image électrostatique entre une particule chargée et une surface non-chargée.

### 1.3.3/ DYNAMIQUE DES PARTICULES : INTERACTION GAZ / PARTICULES

Après avoir vu les équations régissant la motion du fluide (l’air) et aussi celles des forces responsables de l’adhésion des particules entre-elles ainsi qu’aux surfaces avec lesquelles elles entrent en contact, nous nous intéressons, à présent, aux mécanismes qui sont à l’origine du **mouvement** des particules dans un aérosol. La compréhension de ces phénomènes régissant le comportement dynamique des particules dans l’aérosol est déterminant pour l’étude des techniques de séparation, de filtration, de détachement, d’adhésion et de rebonds.

Le mouvement des particules peut être dû à différents phénomènes. Dans cette section, trois types de mécanismes responsables du mouvement des particules dans les aérosols sont étudiés : le phénomène de diffusion, les forces de friction et les forces inertielles. Avant de présenter ces différentes forces mises en jeu, le concept de **libre parcours moyen** ainsi que la notion de **continuité du fluide** seront introduits.

#### 1.3.3.1/ LIBRE PARCOURS MOYEN

Dans un gaz, le libre parcours moyen moléculaire  $\lambda$  est la distance parcourue par une molécule de gaz avant d’entrer en collision avec la molécule voisine. Pour l’air, sous pression atmosphérique à température  $T = 20^\circ\text{C}$  ;  $\lambda_r = 0,0664 \mu\text{m}$ .

Pour des conditions de température et pression différentes, nous pouvons calculer  $\lambda$  en utilisant la relation 1.15 proposée par Willeke en 1976 [41] :

$$\lambda = \lambda_r \frac{101}{P} \frac{T}{293} \left( \frac{1 + \frac{110}{293}}{1 + \frac{110}{T}} \right) \quad (1.15)$$

#### 1.3.3.2/ NOTION DE CONTINUITÉ

Les équations de Navier et Stokes ne sont valides que pour les fluides continus. Or les fluides, en l’occurrence l’air, sont en réalité un ensemble discret de molécules. Si la taille des particules suspendues étudiées est très grande devant le libre parcours moyen moléculaire  $d_p \gg \lambda$ , il est possible de négliger cet aspect discret du gaz pour le considérer comme une substance continue : nous parlons dans ce cas de **régime continu**. Dans le cas contraire, les particules peuvent “glisser”

ou passer entre les molécules et il n'est alors plus possible de parler de régime continu mais de régime "partiellement raréfié".

Le nombre de Knudsen,  $K_n$ , est défini comme le ratio entre le libre parcours moyen moléculaire et la taille des particules dans un aérosol.

$$K_n = \frac{2\lambda}{d_p} \quad (1.16)$$

Ce nombre  $K_n$  est utilisé comme indicateur de régime continu ou non, trois cas peuvent être distingués (cf. tableau 1.3) :

Nombre de Knudsen $K_n$	Régime
$K_n \ll 1$	Régime continu
$K_n \gg 1$	Flux moléculaire libre
$0,4 < K_n < 20$	Régime transitoire ou partiellement raréfié

TABLE 1.3 – Nombre de Knudsen [31].

Pour les particules fines où le nombre de Knudsen est proche de l'unité, un facteur de correction appelé facteur de Cunningham est utilisé pour permettre tout de même d'appliquer les mêmes lois que celles régissant le régime continu. Le facteur de Cunningham peut être déterminé grâce à l'équation 1.17.

$$C_c = 1 + K_n(\alpha + \beta e^{-\gamma/K_n}) \quad (1.17)$$

Dans le cas de l'air, les constantes  $\alpha, \beta$  et  $\gamma$  ont été définies à température ambiante par Allen et Raabe [42] comme  $\alpha = 1,142$ ,  $\beta = 0,558$  et  $\gamma = 0,999$ . Les facteurs de Cunningham pour différents diamètres de particules sont présentés dans l'équation 1.18. Nous pouvons observer que  $C_c \approx 1$  quand  $d_p \geq 1 \mu\text{m}$ , on se rapproche alors du régime continu et qu'il augmente lorsque la taille des particules se rapproche du libre parcours moyen de l'air  $\lambda_r = 0,0664 \mu\text{m}$ .

$$C_c = \begin{cases} 1,01 & \text{si } d_p = 10 \mu\text{m} \\ 1,03 & \text{si } d_p = 5 \mu\text{m} \\ 1,15 & \text{si } d_p = 1 \mu\text{m} \\ 1,30 & \text{si } d_p = 0,5 \mu\text{m} \\ 2,85 & \text{si } d_p = 0,1 \mu\text{m} \\ 5,02 & \text{si } d_p = 0,05 \mu\text{m} \end{cases} \quad (1.18)$$

### 1.3.3.3/ PHÉNOMÈNE DE DIFFUSION

Que ce soit pour des molécules de gaz ou pour des particules contenues dans un aérosol, ce phénomène apparaît s'il existe un gradient de concentration entraînant un mouvement des concentrations élevées vers les concentrations faibles. Dans le cas de molécules de gaz, le flux moyen est donné par la loi de Fick [43] formulée dans l'équation 1.19,

$$\phi = -D \frac{\partial C}{\partial x}, \quad (1.19)$$

avec  $C$  la concentration du gaz et  $D$  le coefficient de diffusion qui dépend de la nature du gaz [17]. Les particules en suspension dans un gaz obéissent à un schéma similaire, les particules les plus fines diffusent plus facilement. La diffusion des particules est aussi appelée mouvement Brownien. Le coefficient de diffusion des particules dans un gaz est donnée par la formule 1.20 [31],

$$D = kTB \quad \text{avec} \quad B = \frac{C_c}{3\pi\eta d_p}, \quad (1.20)$$

où  $k = 1,38 \cdot 10^{-23}$  N.m/K est la constante de Boltzmann et  $T$  la température. Le terme  $B$  est défini comme étant la mobilité mécanique de la particule. Celle-ci représente la vitesse induite par unité de force appliquée sur la particule.

En comparaison avec les autres forces présentées par la suite, le phénomène de diffusion est dominant pour les particules ultra fines ou les nano-particules ( $d_p < 0,1 \mu\text{m}$ ).

#### 1.3.3.4/ FORCE DE FRICTION

La force de friction  $F_d$  peut être vue comme étant la résistance qu'exercent les molécules du fluide sur les particules en mouvement. Cette force prend de l'importance pour les particules de taille  $d_p > 0,1 \mu\text{m}$ . Cette force peut être calculée selon la formule 1.21 appelée loi de Stokes [44],

$$F_d = \frac{3\pi\mu d_p V}{C_c}, \quad (1.21)$$

$C_c$  étant le nombre de Cunningham et  $V$  la vitesse relative de la particule dans le fluide. La loi de Stokes est valide uniquement dans le cas d'un nombre de Reynolds très petit  $Re \ll 1$  (régime de Stokes). Quand le nombre de Reynolds devient plus grand ( $Re > 1$ ), la formule 1.22 devra être utilisée.

$$F_d = C_d \frac{\pi d_p^2}{4} \frac{1}{2} \rho_g V^2, \quad (1.22)$$

où  $C_d$  est le coefficient de friction. Celui-ci peut être estimé à l'aide des formules ci-dessous :

$$C_d = \begin{cases} \frac{24}{Re} & \text{si } 0,1 \leq Re < 0,1 \text{ [31]} \\ \frac{24}{Re}(1 + 0,0196 Re) & \text{si } 0,1 \leq Re < 5 \text{ [45]} \\ \frac{24}{Re}(1 + 0,158 Re^{2/3}) & \text{si } 5 \leq Re < 1000 \text{ [46]} \end{cases}$$

De l'équation 1.22, nous pouvons noter une dépendance de la force de friction au carré du diamètre  $F_d \propto d_p^2$ . Dans l'équation 1.21, la force est directement proportionnelle au diamètre de la particule  $F_d \propto d_p$ . Or il est à préciser que ceci est uniquement vrai pour les particules de diamètre  $d_p \geq 1 \mu\text{m}$ ; le facteur de Cunningham  $C_c$  étant inversement proportionnel à la taille des particules dans

le cas contraire (cf. équation 1.17) [47].

Il est important de noter que cette force agit sur les particules en mouvement dans le fluide avec une vitesse  $V$ , il est donc facile de déduire des équations 1.21 et 1.22 qu'en cas de vitesse nulle, cette force s'annule complètement.

### 1.3.3.5/ FORCES INERTIELLES

Les forces inertielles deviennent dominantes pour les particules de taille importante ( $d_p > 1 \mu\text{m}$ ). Tout d'abord, la force gravitationnelle agissant sur une particule de taille  $d_p$  est donnée par l'équation 1.23,

$$F_g = \frac{\pi d_p^3}{6} \rho g, \quad (1.23)$$

$g$  étant la gravité,  $\rho = (\rho_p - \rho_g)$  représente l'écart entre la densité de la particule et celle du gaz. Puisque  $\rho_g \ll \rho_p$ , nous supposons que  $\rho \approx \rho_p$ .

La vitesse terminale de chute  $V_{ts}$  peut désormais être introduite comme étant la vitesse de particule pour laquelle les forces gravitationnelles et de friction sont égales et s'annulent  $F_g = F_d$  (cf. figure 1.10). La vitesse terminale de chute est donnée par l'expression 1.24 :

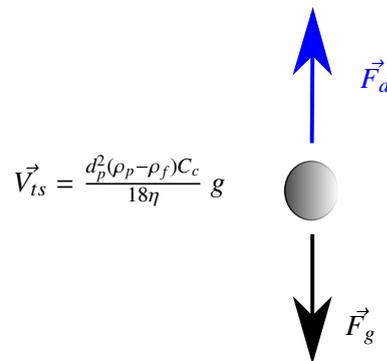


FIGURE 1.10 – Vitesse terminale de chute d'une particule dans l'air soumise à la force gravitationnelle.

$$V_{ts} = \tau g \quad (1.24)$$

avec  $\tau = \frac{d_p^2(\rho_p - \rho_f)C_c}{18\eta}$  le temps de relaxation de la particule ; cette variable étant proportionnelle au carré du diamètre de la particule. Pour les particules très fines ( $d < 1 \mu\text{m}$ ), le facteur de Cunningham étant dépendant linéairement de  $1/d_p$ , le temps de relaxation devient proportionnel à  $d_p$  :  $\tau \propto d_p$ . En revanche pour les particules ultra fines (ou nano-particules), il ne dépend quasiment pas de la taille, cela est vrai également pour les molécules. Dans tous les cas, pour les particules de diamètre inférieur à  $0,1 \mu\text{m}$ , la force gravitationnelle peut être négligée.

Nous pouvons constater, de l'équation 1.23, la dépendance de la force gravitationnelle au diamètre de la particule à la puissance 3. Ceci implique que pour les tailles de particules plus importantes, cette force devient prédominante par rapport à la force friction.

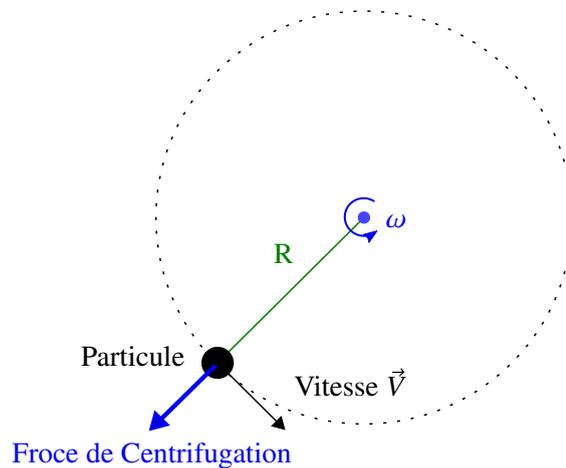


FIGURE 1.11 – Représentation schématique de la force de centrifugation

En présence d'un mouvement de flux rotationnel, une force de centrifugation s'ajoute à la force gravitationnelle (cf. figure 1.11). Si  $\omega$  est la vitesse rotationnelle et  $R$  le rayon de rotation, alors la force de centrifugation sera donnée par l'équation 1.25.

$$F_{cf} = m.R.\omega^2, \quad (1.25)$$

$m$  étant la masse de la particule, celle-ci peut s'écrire  $m = \frac{4}{3} \rho \left(\frac{d_p}{2}\right)^3$ . Dans ce cas également, une dépendance de la force au diamètre de la particule au cube est observée.

### 1.3.3.6/ AUTRES FORCES

D'autres phénomènes peuvent aussi influencer sur le mouvement dynamique des particules. En présence d'un champ électrique par exemple, les particules chargées seront directement affectées. Un champ magnétique peut également influencer le mouvement des particules magnétiques. L'effet de ces forces n'est pas détaillé dans ce rapport car ces conditions ne figurent pas dans le cahier des charges du projet.

### 1.3.3.7/ BILAN DES FORCES

Suite à la présentation des différents phénomènes physiques responsables du mouvement des particules dans les aérosols, un bilan peut être dressé de manière à montrer les cas de prédominance.

Pour les particules ultra fines ou nano-particules ( $d_p < 0,1 \mu\text{m}$ ), ce sont les phénomènes de diffusion qui sont déterminants. Pour les particules fines et grossières, c'est-à-dire celles comprises dans l'intervalle  $[0,1 \mu\text{m}, 10 \mu\text{m}]$ , les forces de friction prennent de l'importance. Enfin, pour les particules de diamètre plus important, c'est-à-dire celles comprises entre  $1 \mu\text{m}$  et  $100 \mu\text{m}$ , les

forces gravitationnelles prédominent.

Il est à noter que les effets électrostatiques sont aussi présents de manière significative pour les particules comprise dans l'intervalle intermédiaire  $[0,1 \mu\text{m}, 10 \mu\text{m}]$ . Ces intervalles ne sont donc pas absolus mais sont utiles pour donner une approximation de la prédominance des différents phénomènes sur le mouvement des particules. La figure 1.12 schématise les zones d'influence des forces sur le mouvement des particules dans un aérosol selon leur taille.

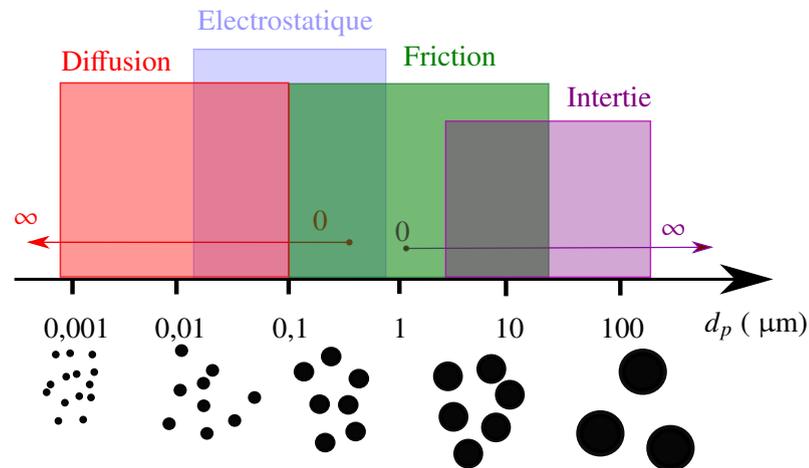


FIGURE 1.12 – Zones d'influence des forces sur la dynamique des particules selon leur taille.

#### 1.4/ NOTION DE TAILLE DE PARTICULE

La taille des particules est l'une des caractéristiques les plus importantes dans un aérosol car elle constitue l'élément décisif pour la compréhension du comportement des particules dans un aérosol. En effet, en observant les diverses équations présentées dans la section précédente décrivant les différentes forces mises en jeu, nous pouvons constater que celles-ci dépendent toutes de la taille de la particule.

Il est à rappeler que les équations données précédemment sont toutes formulées avec l'hypothèse que les particules sont sphériques ; leur taille se trouve donc caractérisée par leur diamètre noté  $d_p$ . Cette supposition n'est évidemment pas toujours vraie même s'il existe certains cas où elle peut être valide, notamment pour les particules liquides (gouttelettes) ou pour les sphères de Polystyrène Latex (PSL) synthétisées en laboratoire.

Dans l'atmosphère, la majorité des particules ne sont pas sphériques et présentent au contraire des formes quelconques. Dans ce cas, la taille ne peut plus être déterminée à partir d'une grandeur géométrique comme le diamètre, d'où la nécessité d'introduire la notion de **diamètre équivalent**. En effet, celui-ci permet de décrire la taille d'une particule vis à vis d'une propriété particulière de cette dernière. En d'autres termes, il représente le diamètre d'une sphère équivalente dont les propriétés physiques seraient identiques à celles de la particule considérée. Selon la propriété

recherchée et l'application, une même particule peut donc avoir différents types de diamètres équivalents : diamètre optique, diamètre de Stokes, diamètre aérodynamique ... etc

#### 1.4.1/ DIAMÈTRE DE STOKES

Le diamètre de Stokes est défini comme étant le diamètre d'une particule de même densité que la particule considérée et ayant la même vitesse terminale de chute (cf. équation 1.24). En d'autres termes, il s'agit de ramener la particule sous forme sphérique tout en gardant ses propriétés physiques. Les diverses équations présentées précédemment peuvent alors directement être appliquées pour des particules de formes quelconques en remplaçant  $d_p$  par le diamètre de Stokes, et ce, en gardant la même densité  $\rho_p$ .

#### 1.4.2/ DIAMÈTRE AÉRODYNAMIQUE

À partir du diamètre de Stokes, il est possible de définir le diamètre aérodynamique. Il correspond alors au diamètre d'une sphère présentant, comme pour le diamètre de Stokes, la même vitesse terminale de chute que la particule considérée, mais ramenée à une densité unitaire ( $\rho = 1 \text{ g/cm}^3$ ). Ainsi, contrairement au diamètre de Stokes, cette notion de diamètre aérodynamique peut être utilisée pour décrire des aérosols composés de particules de natures différentes, comme dans le cas de la pollution atmosphérique.

Le diamètre aérodynamique ou AED<sup>3</sup> est largement utilisé dans le cas des particules de diamètre  $d_p$  supérieur à 0.3-0.5  $\mu\text{m}$  [16] où les forces inertielles sont significatives (cf. figure 1.12), notamment pour les systèmes respiratoires et les instruments de séparation tels les cyclones et les impacteurs. C'est aussi ce type de diamètre équivalent qui est utilisé pour décrire les particules de pollution comme les PM10 et les PM2,5 : il s'agit donc de particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à 10  $\mu\text{m}$  ou 2,5  $\mu\text{m}$ . Sur la figure 1.13 est illustré un schéma représentant la différence entre le diamètre de Stokes et le diamètre aérodynamique. Dans la suite de ce manuscrit, le terme "diamètre" signifiera implicitement diamètre aérodynamique.

#### 1.4.3/ DIAMÈTRE DE MOBILITÉ ÉQUIVALENTE

Pour les particules nanométriques où les forces gravitationnelles sont moins dominantes (cf. section 1.3.3.7), le diamètre équivalent le plus pertinent est celui correspondant à la mobilité équivalente. Ce diamètre est défini comme celui d'une sphère ayant la même mobilité que la particule en question ; la mobilité est définie comme la vitesse produite par une force externe unitaire précédemment décrite dans la section 1.3.3.3.

---

3. Aero-Dynamic Diameter

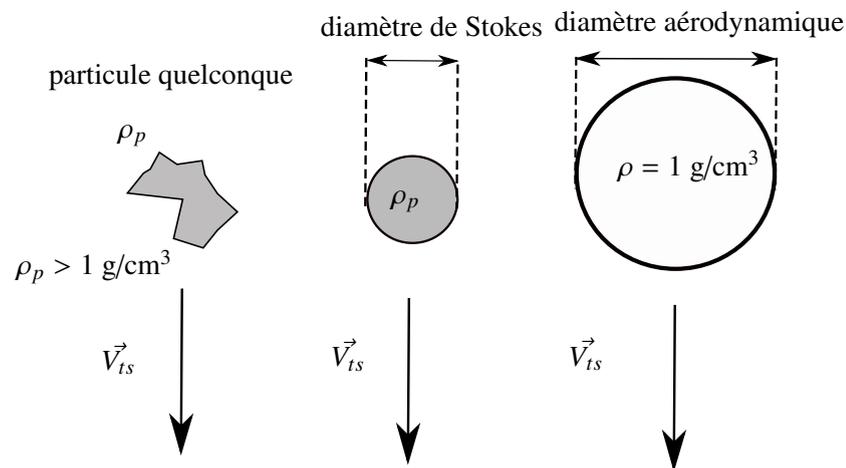


FIGURE 1.13 – Comparaison entre le diamètre aérodynamique, le diamètre de Stokes et la taille réelle d'une particule.

#### 1.4.4/ AUTRES DIAMÈTRES ÉQUIVALENTS

Dans la littérature, il est possible de rencontrer des définitions correspondantes à d'autres types de diamètres équivalents, notamment :

- de la **mobilité électrique** : diamètre d'une sphère présentant la même mobilité électrique que la particule considérée.
- du **volume équivalent** : diamètre d'une sphère ayant le même volume que la particule en question.
- **optique** : diamètre d'une sphère présentant la même diffusion à la lumière que la particule considérée.
- de la **masse équivalente** : diamètre d'une sphère ayant la même masse que la particule en question.

### 1.5/ LES TECHNIQUES DE MESURE DES PARTICULES

Différents instruments et techniques de mesure peuvent être utilisés selon les caractéristiques recherchées des aérosols. Dans cette section, ne sont traitées que les techniques de mesure dont le but est d'obtenir des informations concernant la taille et la concentration des particules. Les techniques ayant pour but l'étude de la nature chimique, de la toxicité ou autres ne seront pas abordées.

Tout d'abord, nous pouvons distinguer deux approches :

- La mesure en différé : la quantité de particules collectées par un filtre est estimée après analyse de celui-ci dans un laboratoire spécialisé. Cette approche reste la plus répandue. Celle-ci présente pourtant des inconvénients évidents tels que les problèmes inhérents au transport et à la conservation des échantillons.
- La mesure en temps réel. C'est cette dernière qui nous intéresse dans notre travail.

Pour déterminer la concentration et la taille des particules, deux grandes familles technologiques se

distinguent sur le marché de la caractérisation des aérosols : les méthodes optiques et les méthodes gravimétriques.

Avant de développer notre propre système de mesure, il a donc paru indispensable de bien comprendre les caractéristiques de ces deux méthodes ainsi que celles liées aux techniques radiométriques et électrostatiques ; celles-ci, bien que moins répandues, présentant des avantages au niveau de la mesure en temps réel.

### 1.5.1/ MÉTHODES OPTIQUES : COMPTEUR DE PARTICULES

Les analyseurs optiques, appelés compteurs optiques (OPC<sup>4</sup>), sont tous basés sur le principe de diffusion de la lumière. C'est une méthode d'analyse très utilisée car non destructive.

#### 1.5.1.1/ PRINCIPE

Le principe de la diffusion statique de lumière est basé sur l'interaction des particules avec un faisceau lumineux qui se voit atténué par celles-ci. Ce phénomène est engendré par la faible transmission de la lumière dans l'aérosol. Les paramètres qui influent sur le phénomène de diffusion sont donnés par la loi de Lambert-Beer [48].

$$I = I_0 \cdot e^{-\tau x}, \quad (1.26)$$

$I$  étant l'intensité du faisceau transmis,  $I_0$  l'intensité du faisceau incident et  $\tau$  la constante d'atténuation. L'atténuation, appelée aussi extinction [49], consiste en deux phénomènes distincts : la diffusion qui a pour effet de dévier la lumière et l'absorption.

Dans un compteur de particules, un faisceau laser illumine les particules. La lumière diffusée est captée par un photo détecteur qui la convertit en un signal électrique. L'intensité diffusée dépendant directement de la taille des particules, il est ensuite possible de remonter à cette dernière.

#### 1.5.1.2/ AVANTAGES ET INCONVÉNIENTS DES COMPTEURS DE PARTICULES

Très utilisée pour la caractérisation des aérosols, ce type de technologie présente plusieurs avantages notamment celui de ne pas être destructive et de ne nécessiter que peu de maintenance. En effet, ce type d'instruments s'encrassent relativement peu puisqu'il s'agit d'un faisceau lumineux dont on mesure la diffusion au passage des particules.

La principale limite de cette technologie pour la caractérisation de la pollution atmosphérique est que la mesure est basée sur la taille équivalente optique et non pas aérodynamique. Pour remonter à celle-ci, il est alors nécessaire de connaître la composition chimique des particules concernées. Celles-ci étant généralement de natures diverses, la procédure peut s'avérer complexe.

L'autre inconvénient de ce type de technologie est la complexité de la dépendance entre l'intensité de la diffusion et la taille des particules. En effet, pour des particules très fines, nous nous

---

4. Optical Particle Counters

trouvons dans le régime de Rayleigh où l'intensité diffusée est proportionnelle au diamètre à la puissance 6. Cette propriété implique qu'une légère différence de taille entraînera une très grande différence dans l'intensité mesurée. Par conséquent, les mesures pour des particules dont la taille est inférieure à 0,1  $\mu\text{m}$  deviennent délicates car le signal obtenu est très faible [50]. Par ailleurs, dans le cas des particules grossières, nous nous trouvons dans le régime de Mie pour lequel la relation entre la taille de la particule et l'intensité diffusée est complexe [49]. Ceci rend les mesures dans ce régime incertaines et nécessite des calibrations fréquentes.

Enfin, il est important de souligner que les compteurs de particules ne comptent pas les particules mais la quantité de lumière diffusée. Celle-ci varie en fonction d'autres paramètres que la taille comme la forme (sphérique ou pas) ou l'albédo<sup>5</sup>. En effet, la réflectivité d'une particule composée d'aluminium est différente de celle d'une particule composée de carbone.

### 1.5.2/ LES MÉTHODES GRAVIMÉTRIQUES

La deuxième grande famille d'instruments de mesure de particules couramment utilisés pour caractériser les aérosols est celle basée sur des méthodes gravimétriques. Le principe général de ces méthodes est de prélever un certain volume d'air et d'en collecter les particules sur un filtre ou un collecteur. Ce dernier est ensuite pesé pour déterminer la quantité de particules piégées. Il est possible d'estimer la concentration particulaire avec une simple formule  $C = m/V$ , où  $V$  est le volume de l'aérosol prélevé ; celui-ci étant dépendant du débit de prélèvement  $Q$  et du temps de prélèvement. Grâce à ces méthodes de mesure, il est possible d'obtenir des analyses précises des aérosols. En revanche, les mesures ne sont généralement pas réalisées en temps-réel puisque il est nécessaire d'effectuer des pesées avant et après le prélèvement des particules, ceci requérant l'intervention d'un opérateur. Les supports utilisés pour collecter les particules sont des filtres ou des classificateurs inertiels comme les cyclones ou les impacteurs.

Les filtres sont souvent utilisés pour retirer les particules indésirables d'un flux. Néanmoins, ils peuvent aussi servir à la caractérisation des aérosols lorsqu'ils sont utilisés comme substrat de collection. Les filtres existent dans diverses formes et matériaux. Ceux-ci doivent pouvoir maintenir leur efficacité de collection durant le prélèvement tout en assurant une chute de pression suffisamment faible pour maintenir la continuité du flux nécessaire à la filtration. Les filtres les plus couramment rencontrés sont présentés ci-dessous : les filtres à fibres, les filtres à membrane et les filtres à pores capillaires [51].

Les filtres à fibres sont fabriqués d'un tissu constitué de fibres de diamètre compris entre 0 et 100  $\mu\text{m}$  et d'épaisseur de l'ordre de 0,15 à 0,5 mm. Les filtres à base de fibre de cellulose sont parmi les plus utilisés du fait de leur tarif avantageux, de quelques centimes d'euros pièce. Il existe aussi les filtres à fibre de verre, légèrement plus onéreux, mais dont l'efficacité est moins affectée par l'humidité et entraînera une faible chute de pression (cf. figure 1.14(a)). Les filtres à membranes, quant à eux, sont constitués de membranes microporeuses composées de gels eux-mêmes formés à partir de solutions colloïdales (cf. figure 1.14(b)). Ce type de filtre présente l'avantage

---

5. le pouvoir réfléchissant d'une surface, soit le rapport de l'énergie lumineuse réfléchie à l'énergie lumineuse incidente.

d'avoir une bonne efficacité mais la chute de pression engendrée est élevée. Enfin, pour les filtres à pores capillaires, il s'agit de films fins intégrant des pores cylindrique de 0,1 à 8  $\mu\text{m}$  de diamètre. Les particules à filtrer vont impacter sur la surface puis seront interceptées à l'entrée des pores et arrêtées par diffusion sur les parois internes (cf. figure 1.14(c)). Ces filtres sont caractérisés par une chute de pression importante.

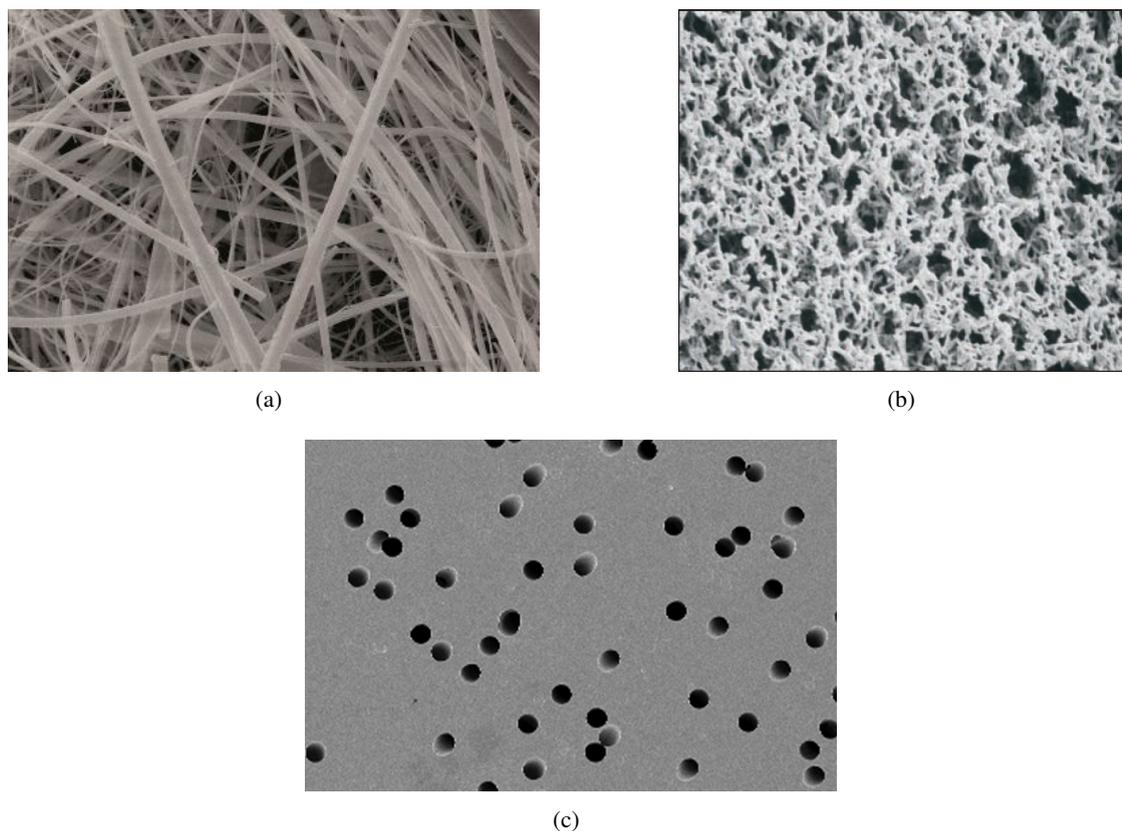


FIGURE 1.14 – Images des différents types de filtres : (a) filtre à fibres, (b) filtre à membrane et (c) filtre à pores capillaires.

Le grand inconvénient de l'utilisation des filtres est l'impossibilité de faire des distinctions de taille car ceux-ci interceptent toutes les particules au delà d'une certaine taille. Comme alternative aux filtres, il est possible d'utiliser des instruments appelés classificateurs inertiels. Ceux-ci ont la propriété de séparer les particules en se basant sur les forces inertielles et sont caractérisés par un diamètre de coupure. Celui-ci, couramment dénoté  $d_{50}$ , correspond au diamètre aérodynamique des particules collectées à hauteur de 50% par le classificateur inertiel (cf. figure 1.15). Le  $d_{50}$  serait l'équivalent pour un filtre électrique à la fréquence de coupure  $f_c$  à mi-puissance (-3 dB).

Dans le cadre de nos travaux, nous avons choisi d'approfondir l'étude de deux instruments en particulier, les impacteurs en cascade et les cyclones.

## Les impacteurs

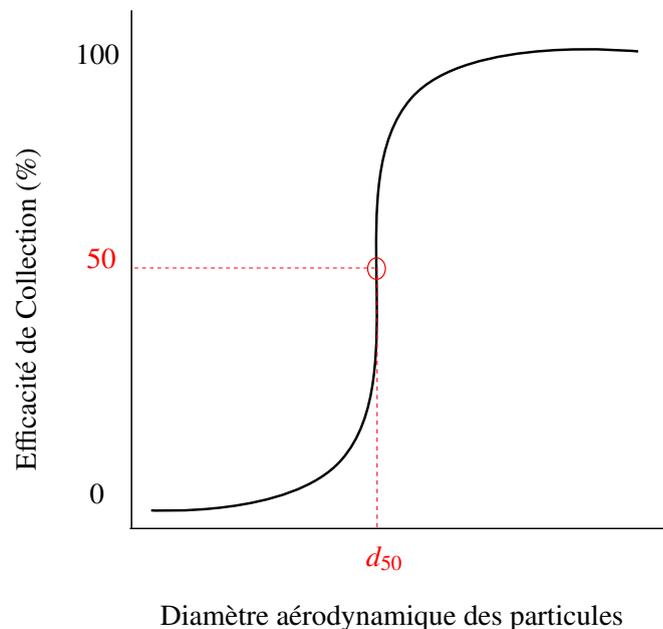


FIGURE 1.15 – Définition du diamètre de coupure des classificateurs inertiels.

Les impacteurs en cascade sont des classificateurs inertiels basés sur l'impaction de particules sur des plaques de collection. Le principe schématisé sur la figure 1.16 est le suivant : l'air chargé de particules pénètre dans la cheminée d'entrée, puis passe par un ensemble de trous entraînant l'accélération du flux à chaque étage. Les particules bénéficiant d'une inertie plus importante, c'est-à-dire celles ayant un diamètre aérodynamique plus grand, s'en trouvent déviées de la trajectoire du flux d'air. Elles se retrouvent alors collées sur la plaque d'impaction ; les particules plus petites vont, quant à elles, suivre les lignes du flux d'air jusqu'au prochain étage et ainsi de suite dans l'ensemble de l'impacteur. Les particules ultra-fines n'ayant pas impacté sur aucun étage se retrouvent arrêtées par un filtre absolu, typiquement un filtre à fibres, placé en bas de l'impacteur.

Après amoncellement des particules collectées sur les plaques, celles-ci sont pesées individuellement. Cette étape, permettant d'obtenir la distribution granulométrique du prélèvement d'air effectué, nécessite le démontage du système complet. L'utilisation de ce type de technologie pour des mesures en temps réel s'en trouve alors compromise. Les diamètres de coupure des différents étages dépendent de la géométrie, c'est-à-dire du diamètre et de la position des trous, ainsi que du débit de prélèvement. Le facteur clé du principe de séparation est le nombre de Stokes, cet aspect théorique des impacteurs en cascade sera décrit dans le troisième chapitre de ce manuscrit. Les principales faiblesses des impacteurs sont la présence d'effets de rebonds et le risque de perte d'efficacité liée à l'accumulation des particules sur les plaques d'impaction. Ces phénomènes, en particulier celui des rebonds, seront discutés de manière approfondie dans le chapitre 4.

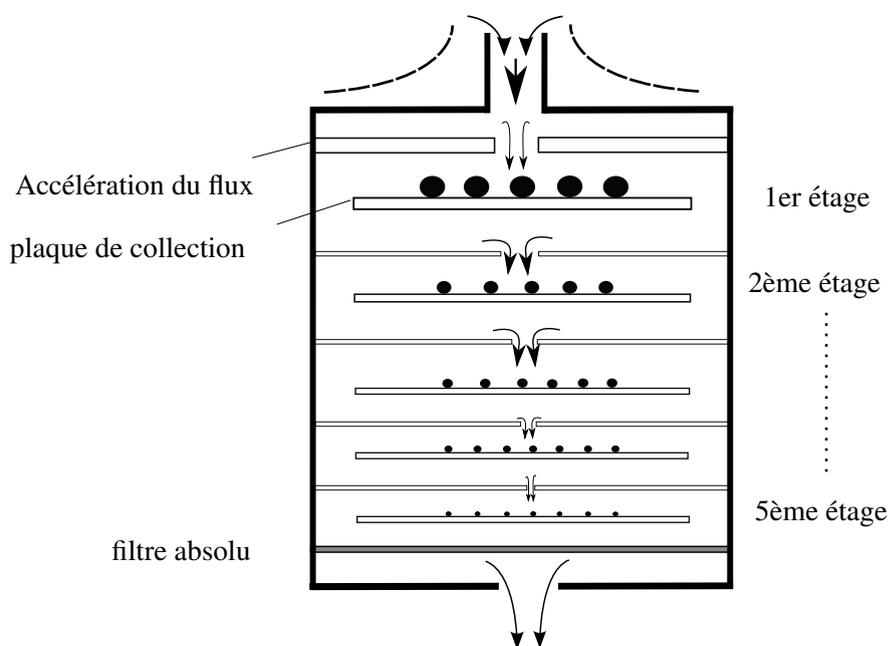


FIGURE 1.16 – Principe de fonctionnement des impacteurs en cascade.

### Les cyclones

Les cyclones sont des instruments très utilisés en industrie pour collecter les poussières dans les divers procédés de fabrication [52]. Leur qualité dominante est la capacité à collecter une importante quantité de particules en comparaison aux impacteurs dont efficacité peut chuter avec l'accumulation des particules.

Le principe est schématisé dans la figure 1.17. Dans ce type de système, le flux d'air pénètre tangentiellement à la surface interne d'un cylindre puis tourbillonne en spirale. Dans la partie basse du cylindre, le cône entraîne un changement de direction du flux qui remonte également en spirale autour de l'axe du cylindre pour finalement atteindre la sortie située en haut du cylindre. Les particules de diamètre plus important, présentant donc une plus grande inertie, quittent la ligne du flux et vont se déposer à la base du cylindre au niveau du bouchon.

De la même manière qu'un impacteur, un cyclone est caractérisé par un diamètre de coupure  $d_{50}$  qui dépend lui-même des dimensions du cyclone et du débit d'air choisi. Par conséquent, pour un débit donné, un cyclone présente un seul diamètre de coupure. De nombreuses théories ont été proposées [53–55] pour prédire les performances des cyclones en fonction de différents paramètres tels que la température, les dimensions et le débit. Néanmoins, il n'existe aucune relation fondamentale généralement admise permettant de modéliser le comportement et les performances d'un cyclone [56]. Cependant, la relation entre diamètre de coupure d'un cyclone et le débit peut être décrite de manière empirique par la loi 1.27, les constantes  $K$  et  $n$  dépendant du cyclone utilisé.

$$d_{50} = KQ^n \quad (1.27)$$

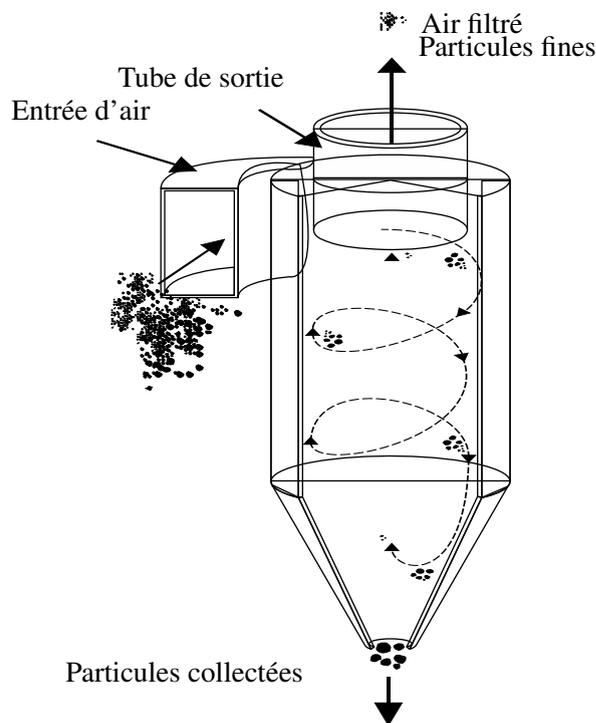


FIGURE 1.17 – Schéma de principe d'un cyclone.

Le principal inconvénient des cyclones réside en l'impossibilité d'obtenir des quantifications granulométriques des aérosols, un cyclone fonctionnant à un débit donné présente un seul diamètre de coupure.

Les impacteurs et les cyclones sont très largement utilisés pour la caractérisation des aérosols. Il existe cependant d'autres collecteurs ou classificateurs inertiels basés sur des principes relativement proches. On peut citer dans cette catégorie :

- **Le spectromètre inertiel** : dans cet instrument, développé initialement par Prodi et al [57], l'aérosol est injecté dans un flux d'air propre de manière perpendiculaire. Les particules se trouvent ensuite collectées sur un filtre. Cet instrument a l'avantage de ne pas présenter de problèmes liés au phénomène de rebonds mais à l'instar des cyclones, il ne permet d'obtenir qu'un seul diamètre de coupure  $d_{50}$ .
- **Les Impingers** : ces instruments, développés en 1922 par Geenburg et Smith [58], présentent un principe semblable à celui des impacteurs. Cependant, les particules sont collectées sur une surface liquide.
- Enfin, **les centrifuges** sont des instruments utilisant de grandes vitesses de rotation permettant d'imposer des forces de centrifugation importantes ; les particules présentant un diamètre aérodynamique important sont contraintes à quitter l'aérosol.

Ce paragraphe n'est qu'un aperçu des méthodes gravimétriques pour la mesure des particules. Un tour d'horizon détaillé de toutes les technologies basées sur un principe gravimétrique est présenté dans les papiers de Hering [56] et de Marple [52].

## 1.5.3/ MÉTHODES RADIOMÉTRIQUES

Le principe de la jauge  $\beta$  est basé sur la détermination de la masse des particules obtenue à partir de la variation relative de l'intensité du rayonnement bêta d'un filtre avant et après collection des particules. Les jauges  $\beta$  ont depuis longtemps été utilisées pour les mesures de masse et en particulier pour la caractérisation des aérosols [59]. Les premières applications visaient des environnements très pollués comme, par exemple, l'air des mines de charbon [60, 61]. Par la suite, l'amélioration de leur sensibilité a permis de les appliquer à la caractérisation de la pollution atmosphérique [62–64].

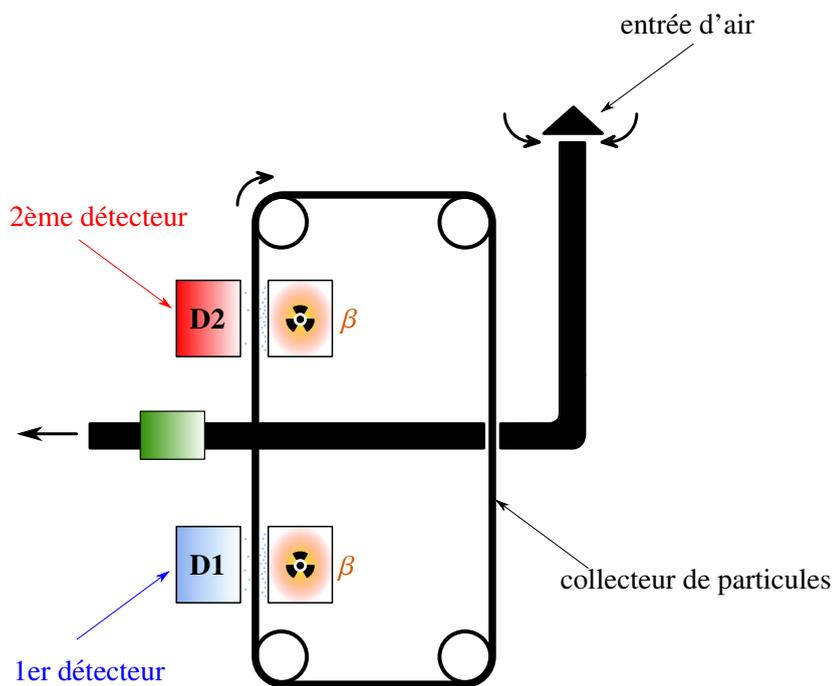


FIGURE 1.18 – Représentation schématique d'une jauge  $\beta$

La théorie de la pénétration des particules  $\beta$  dans la matière a été donnée par Friedlander en 1981 [65]. Le principe d'atténuation  $\beta$  est basé sur une loi exponentielle, analogue à celle de Lambert-Beer [48].

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu x}, \quad (1.28)$$

où  $I_0$  est l'intensité du flux de particules  $\beta$  incident,  $I$  le flux émis,  $x$  la densité surfacique ( $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) et  $\mu$  le coefficient d'atténuation. Ainsi, à partir de la mesure de  $I$ , il est possible de connaître la masse des particules.

Dans la figure 1.18 est illustré le principe de mesure d'une jauge  $\beta$ . Les particules sont collectées sur un ruban servant de filtre et ayant un mouvement cyclique. Deux systèmes d'émetteur-détecteur de radiation  $\beta$  sont placés avant et après le piégeage des particules de l'aérosol sur le filtre. En comparant les deux mesures obtenues, il est possible de remonter à la masse collectée par le filtre. Dans ce genre d'instrument, pour avoir une information sur la taille des particules correspondant à

la masse mesurée, il est nécessaire d'utiliser en amont de la jauge  $\beta$  un système de séparation des particules tel un cyclone. Cette technique permet des mesures de masse très précises mais l'utilisation d'une source radioactive peut être un frein à l'utilisation de cet instrument, sans compter les problèmes liés à la grande consommation d'énergie de ce genre d'équipement.

#### 1.5.4/ MÉTHODE ÉLECTROSTATIQUE

Une autre stratégie de mesure est la mesure de charges des particules. Dans cette catégorie, nous pouvons citer l'ECI<sup>6</sup>, instrument développé par Tropp en 1979 [66] où la séparation des particules est effectuée par l'intermédiaire d'un impacteur en cascade dans lequel les particules sont préalablement chargées. De la sorte, la charge cumulée au niveau de chaque étage est mesurée pour quantifier le nombre de particules présentes. En plus de tous les avantages des impacteurs, l'ECI offre la possibilité de fournir une mesure en temps réel. L'ELPI<sup>7</sup> de Dekati®, basé sur le même principe, sera présenté dans la section 1.7.3.

### 1.6/ PRÉLÈVEMENT DES AÉROSOLS

Le prélèvement ou l'échantillonnage des aérosols est une étape très importante dans l'analyse et la caractérisation. En effet, lors d'une mesure utilisant les technologies précédemment citées, il est nécessaire de prélever un volume d'air représentatif de l'ensemble de l'aérosol original. Pour une mesure de concentration, l'idéal serait d'avoir une concentration identique entre l'aérosol d'origine et le volume prélevé. Or, ceci est loin d'être évident pour différentes raisons liées au système d'échantillonnage.

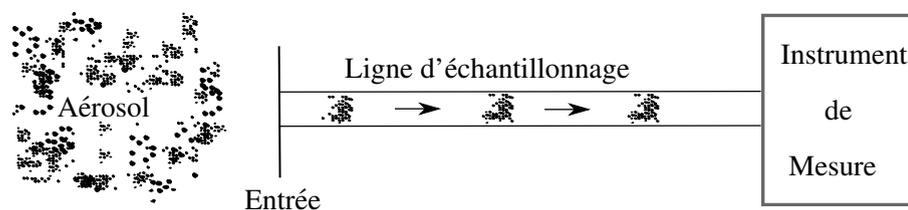


FIGURE 1.19 – Schéma général du principe d'échantillonnage d'un aérosol.

En effet, comme le montre la figure 1.19, dans le cas d'un prélèvement nécessaire à la mesure, l'aérosol pénètre par une entrée, passe ensuite par une ligne d'échantillonnage avant d'arriver à l'instrument de détection. Entre l'entrée et l'instrument de mesure, l'aérosol subit fatalement des

6. Electronic Cascade Impactor

7. Electrical Low Pressure Impactor

transformations ou des pertes. Celles-ci peuvent intervenir au niveau de l'entrée ou lors du transit dans la ligne. Des phénomènes comparables peuvent également avoir lieu lors du stockage ou de l'éventuel transport des échantillons. Leurs répercussions sur la mesure sont détaillées ci-dessous :

- Au niveau de l'entrée de prélèvement :
  - Du fait de la présence des forces et phénomènes physiques discutés dans la section 1.3, les particules peuvent se déposer ou se coller à l'entrée du prélèvement. Ce problème peut, dans les cas extrêmes, entraîner la réduction du diamètre d'entrée voir son obstruction complète.
  - Un prélèvement est dit iso-cinétique lorsque la vitesse de prélèvement est égale à celle du flux extérieur. Cette condition est importante pour garantir la représentativité de la concentration de l'aérosol prélevé avec celle de l'aérosol d'origine. Or, l'iso-cinétisme n'est pas toujours effectif et la différence de concentration entre l'aérosol d'origine et celui prélevé peut être extrême dans certains cas. Cette notion sera présentée plus en détail dans le chapitre 3.
- Au niveau de la ligne d'échantillonnage, diverses anomalies peuvent être rencontrées. Notamment :
  - L'évaporation des particules liquides, par exemple des gouttelettes d'eau, en présence de chaleur dans la ligne d'échantillonnage.
  - L'établissement de particules à l'intérieur de la ligne provoquant le ré-entraînement de celles-ci lors de prélèvements successifs.
  - De même, lors du transport de l'aérosol dans la ligne, la formation d'agrégat peut se produire du fait des forces d'adhésion (cf. section 1.3.2), ce phénomène risquant d'entraîner la modification de la taille des particules.

Ces problèmes sont très complexes et les réduire peut s'avérer un véritable défi, les éliminer est impossible. Brockmann aborde la question en détails dans une étude exhaustive [67]. Nous nous contenterons de quelques règles de base qui doivent être suivies dans la mesure du possible pour avoir une représentativité entre l'échantillon prélevé et l'aérosol d'origine, à savoir :

- Prélever un volume suffisant.
- Respecter la condition d'un prélèvement iso-cinétique dans la mesure du possible.
- La vitesse de prélèvement doit être très grande en comparaison avec la vitesse terminale de chute des particules  $V_{ts}$ .
- Minimiser le temps entre le prélèvement et la mesure.
- Utiliser pour la tuyauterie des matériaux évitant le collage des particules, notamment le Teflon.
- Minimiser la longueur des tubes ainsi que les effets électrostatiques.

## 1.7/ ÉTAT DE L'ART DES INSTRUMENTS SUR LE MARCHÉ

Dans cette section, quatre instruments, actuellement utilisés pour la mesure des particules PM10 et PM2,5 en temps réel et dédiés à la mesure de la pollution atmosphérique, seront présentés. Il s'agit du TEOM, d'un compteur optique fabriqué par Grimm®, de l'ELPI de Dekati® et l'impacteur QCM de California Measurements®. Ces instruments seront présentés sous différents angles notamment d'un point de vue technologique, d'efficacité, de taille et coût associé.

### 1.7.1/ LE TEOM

Le TEOM<sup>8</sup> 1405 Ambient Particulate Monitor, correspondant à la version pollution atmosphérique du TEOM [68], est l'instrument de référence utilisé actuellement pour la mesure des particules de pollution atmosphérique (cf. figure 1.20). Il est notamment utilisé pour effectuer des relevés par les associations telles que AIR PACA et ATMO Franche Comté [69]. Le principe de fonctionnement



FIGURE 1.20 – Image d'un TEOM développé par la société américaine Thermo Fisher Scientific®.

du TEOM est le suivant :

L'air est échantillonné à 16,7 Lpm, un cyclone étant positionné en entrée permettant de supprimer les grosses particules non désirées ( $>10 \mu\text{m}$ ). La partie sensible est une poutre oscillante en fibre de verre recouverte de Teflon. Celle-ci est montée sur un tube de verre effilé dont la base est immobile et l'extrémité libre d'osciller à sa fréquence naturelle (ou fréquence propre). La différence de masse due à la présence des particules sur la partie sensible engendre une modification de cette fréquence naturelle. Une électronique dédiée sert à mesurer cette variation fréquence de résonance et permet le calcul de la quantité de particules. La concentration est ainsi calculée continuellement. Une température constante est maintenue durant la mesure et le bruit est réduit grâce à un lissage facilitant la lecture des résultats. Sur le tableau 1.4 sont résumés les principales caractéristiques de cet appareil.

---

8. Tapered Element Oscillating Microbalance Analyser

Caractéristique	Valeur
Technologie	Gravimétrique ✓
Précision	2 µg/m <sup>3</sup> ✓
Résolution	0.5 µg/m <sup>3</sup> ✓
Gamme de concentration	0 - 100000 µg/m <sup>3</sup> ✓
Taille	PM10, PM2,5, PM1 (mais pas simultanément) ✗
Dimensions (sans boîtier)	43.2 cm × 48.3 cm × 75 cm ✗
Dimensions (boîtier extérieur)	178 cm × 111 cm × 62 cm ✗
Poids (sans boîtier)	18 kg ✗
Poids (avec boîtier)	100 kg ✗
Coût	40 k€ ✗

TABLE 1.4 – Tableau récapitulatif des principales caractéristiques du TEOM 1405 [68].

Le TEOM, présenté ici, est un des instruments les plus précis du marché. Il a également l'avantage de faire des mesures basées sur le diamètre aérodynamique, la sélection des particules étant assurée par un cyclone. En revanche, sa taille, son poids et surtout son prix (35-40 k€) sont des limitations importantes à la réalisation de cartographie rapide et dense de la pollution ; celle-ci nécessitant un nombre important de capteurs positionnés à des endroits stratégiques. En outre, le TEOM est dans l'incapacité de faire des mesures simultanées des PM10 et PM2,5. En effet, pour pouvoir changer de taille de particule, il est nécessaire de changer le cyclone d'entrée.

### 1.7.2/ LES COMPTEURS OPTIQUES COMMERCIAUX

Plusieurs entreprises développent des compteurs de particules ou "spectromètres de particules". Parmi elles, nous pouvons citer Topas®, Palas® et MSP®. Un des leaders dans le développement de cette catégorie d'instruments est l'entreprise allemande Grimm®. Celle-ci développe une large gamme de compteurs de particules à base de technologie optique telle que celle décrite dans la section 1.5.1. Les compteurs de particules de Grimm utilisent un type de technologie optique brevetée "*Scattering laser light and filter collection (dual technology)*". Grimm® offre plusieurs modèles basés sur le même principe mais visant des applications différentes : environnement, qualité de l'air intérieur, capteurs mobiles et station de mesure. Pour le type d'applications qui nous intéresse, c'est-à-dire la mesure de la pollution atmosphérique, le modèle "ENVIRO-11E" semble être le plus approprié (cf. figure 1.21) [70].

Les principales caractéristiques du Grimm ENVIRO-11E sont résumées dans le tableau 1.5. Ce compteur optique offre notamment l'avantage par rapport au TEOM de fournir une distribution granulométrique très précise dans la gamme 0,25 – 35 µm avec ses 31 voies. Son principal inconvénient est intrinsèque aux instruments basés sur des technologies optiques, c'est-à-dire la nécessité de le calibrer pour une certaine nature de particules, la mesure n'étant pas basée sur le diamètre aérodynamique (cf. section 1.4.2). Par conséquent, pour des applications où la source polluante est a priori inconnue ou d'origine diverse, une forte incertitude est présente dans la mesure.



FIGURE 1.21 – Image d’un compteur optique Grimm ENVIRO-11E [70]

Caractéristique	Valeur
Technologie	Optique ×
Précision relative	3%
Résolution	0,1 µg/m <sup>3</sup>
Gamme de concentration	0 – 6000 µg/m <sup>3</sup> 2.10 <sup>6</sup> particule/L ✓
Taille	PM10, PM2,5, PM1 (+ distribution granulométrique optionnelle sur 31 voies) ✓
Dimensions (sans boîtier)	27 cm × 17 cm × 5 cm
Autonomie	8 heures
Poids (avec boîtier)	2,1 kg
Coût	≈ 10 k€

TABLE 1.5 – Caractéristiques du compteur optique Grimm E-11[70].

### 1.7.3/ LES IMPACTEURS EN CASCADES COMMERCIAUX

Il existe différents types d’impacteurs en cascade actuellement commercialisés. En particulier, l’entreprise finlandaise Dekati® développe divers instruments basés sur le principe des impacteurs en cascade. Le modèle le plus simple, le “Dekati® PM10 Impactor” [71] (cf. figure 1.22(a)), sépare les particules PM10, PM2,5 et PM1. Cet impacteur fonctionne à un débit de 10 ou 30 Lpm. L’impacteur est composé d’acier inoxydable, il peut donc être utilisé à des températures élevées allant jusqu’à 200 °C. Ce modèle est très intéressant car il permet de mesurer les gammes de particules que l’on recherche dans notre projet. En revanche, à l’instar des impacteurs standards, la pesée des plaques de collection avant et après chaque prélèvement est nécessaire, rendant les mesures en temps réel impossibles. Son coût est de l’ordre de 4000€.

Cette même société Dekati® a développé un autre modèle d’impacteur plus évolué DLPI®+ [72] (cf. figure 1.22(b)). Celui-ci est constitué de quatorze étages permettant d’obtenir une distribution granulométrique comprise entre 6 nm et 10 µm. Dans cet instrument, les particules sont collectées sur des substrats de 25 mm destinés à être pesés avant et après prélèvement. Son débit de fonctionnement est de 10 Lpm et peut être utilisé à des températures relativement élevées (180 °C).

Enfin, le modèle ELPI®+<sup>9</sup> [73] (cf. figure 1.23) est un impacteur temps-réel capable de mesurer

9. Electrical Low Pressure Impactor



FIGURE 1.22 – (a) Impacteur PM10 basique de Dekati® [71] , (b) Impacteur Dekati® DLPI®+[72]

les particules dans la gamme comprise entre 6 nm et 10  $\mu\text{m}$ . La mesure en temps réel est assurée grâce à une mesure de charge à chaque étage. Son principal point négatif est son prix, de l'ordre 50k€. Ses caractéristiques sont résumées dans le tableau 1.6.



FIGURE 1.23 – Impacteur électrique ELPI®+[73]

L'entreprise américaine California Measurements développe également des impacteurs en cascade capables de faire des mesures en temps réel. Ces instruments offrent tous les avantages des impacteurs intégrant des microbalances à quartz (QCM<sup>10</sup>) permettant la mesure de la masse des particules collectées sur chaque étage. Dans cette catégorie, nous retrouvons le modèle "PC-2 Real-Time Air Particle Analyzer", qui comporte dix étages couvrant une large gamme de taille allant de 0,05 à 25  $\mu\text{m}$ . Le débit de prélèvement est de 0,25 Lpm. Ce modèle est destiné aux environnements à concentration moyenne voire élevée, c'est-à-dire quelques  $\text{mg}/\text{m}^3$ . Le Modèle "PC-2H

10. Quartz Crystal Microbalance

Caractéristique	Valeur
Technologie	Électrostatique / Impaction ✓
Résolution	de 250 particules /cm <sup>3</sup> pour les particules de 10 nm à 0,1 particules /cm <sup>3</sup> pour les particules de 5 µm ✓
Taille	6 nm - 10 µm ✓
Dimensions	40,7 cm × 45,4 cm × 24,2 cm ✗
Autonomie	aucune (secteur) ✗
Poids	22 kg ✗
Coût	≈50 k€ ✗

TABLE 1.6 – Tableau récapitulatif des caractéristiques du modèle ELPI®+de la société Dekati® [73].

Real-Time Air Particle Analyzer” (cf. figure 1.24), fonctionnant à 2 Lpm, est similaire au premier mais vise des concentrations plus faibles, jusqu’à quelques µg/m<sup>3</sup>. Ces instruments sont très intéressants pour leurs performances mais leur taille relativement importante et leur électronique vieillissante n’offrant aucun moyen de communication les rend peu adaptés à de la cartographie en temps réel. En effet, l’instrument imprime les résultats de mesures toutes les heures seulement. Ce mode de mesure peut être qualifié de “quasi temps-réel”.



FIGURE 1.24 – Model PC-2H Real-Time Air Particle Analyzer

Un nouvel instrument, appelé QCM Moudi, a été très récemment développé chez MSPcorp® et semble très prometteur [74]. Ce modèle, similaire à celui de California Measurements, est basé sur un impacteur en cascade utilisant des microbalances à quartz, mais plus évolué par rapport à ce dernier du point de vue matériel et logiciel. Ce nouvel instrument est présenté en détail dans un article de Chen et al. [75] mais n’est pas encore commercialisé.

## 1.7.3.1/ RÉCAPITULATIF DES INSTRUMENTS ACTUELS

Dans le tableau 1.7 sont résumés tous les instruments présentés précédemment ainsi que d'autres instruments dont les caractéristiques sont proches.

Instrument	Technologie	Résolution / Précision	Concentration	Taille	Granulométrie	Temps réel	coût
TEOM 1405 (Thermo Fisher)	Gravimétrique	$0,1 \pm 2 \mu\text{g}/\text{m}^3$	0- 6000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	PM10 ou PM2,5 ou PM1	non	oui	35K€
ELPI®+ (Dekati)	Gravimétrique /électrique	NC	NC	10 nm - 10 $\mu\text{m}$	oui	oui	≈50K€
DLPI®+ (Dekati)	Gravimétrique	NC	NC	16 nm - 10 $\mu\text{m}$	oui	non	10K€
PM10 Impactor (Dekati)	Gravimétrique	NC	NC	PM10, PM2,5, PM1	non	non	5000€
OPC 11E9 (Grimm)	Optique	$0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3 \pm 3\%$	0,1 - 10000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0,25 $\mu\text{m}$ - 32 $\mu\text{m}$	oui	oui	10K€
M1000XP-A (MSP)	Optique <sup>11</sup>	NC	NC	10 nm - 10 $\mu\text{m}$	oui	oui	80k €
PC-2H (California Measurements)	Gravimétrique	NC	quelques $\text{mg}/\text{m}^3$	50 nm - 25 $\mu\text{m}$	oui	oui	30K€
PC-2 (California Measurements)	Gravimétrique	NC	quelques $\mu\text{g}/\text{m}^3$	50 nm - 25 $\mu\text{m}$	oui	oui	30K€
QCM- MOUDI (MSP) <sup>TM</sup>	Gravimétrique	$25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (/minute)	NC	PM10, PM2,5, PM1	oui	oui	≈60 k€

TABLE 1.7 – Tableau récapitulatif et comparatif des instruments de caractérisation des aérosols pour la mesure de la pollution atmosphérique.

11. combinée avec une technologie de condensation pour les nanoparticules (Condensation Particle Counter)

## 1.8/ CONCLUSION

Dans ce premier chapitre ont été présentés les fondamentaux concernant la caractérisation des aérosols. Nous avons étudié les différents phénomènes qui entrent en jeu dans le comportement des particules présentes dans les aérosols. Ces phénomènes physiques, bien que divers et variés, peuvent être simplifiés selon la gamme de taille étudiée. Ces notions théoriques ont permis de comprendre les principes technologiques des techniques de mesure existantes et de les comparer. Ainsi, malgré les nombreux avantages des technologies optiques notamment pour les mesures en temps réel, celles-ci semblent peu adaptées à la mesure de la pollution atmosphérique. Les méthodes gravimétriques, quant-à-elles, ne sont pas adaptées à la mesure en temps réel. Les autres méthodes telles que radiométrique ou électrostatique sont, de leur côté, plus contraignantes en termes de taille, coût et consommation en énergie.

Nous avons sélectionné des instruments commerciaux capables de mesurer les PM10 et les PM2,5 dans l'atmosphère en temps réel. Malgré leurs nombreuses qualités, ces instruments ne remplissent pas l'ensemble des caractéristiques recherchées pour le projet P'AIR, que ce soit en termes de taille, coût ou consommation. Pour cette raison, cette thèse a investigué une autre voie incluant l'utilisation des capteurs à ondes élastiques de surface. En effet, ce type de technologie a l'avantage d'offrir une grande sensibilité gravimétrique tout en bénéficiant d'une fabrication collective en salle blanche diminuant fortement son coût de fabrication. En outre, ces éléments étant de nature passive, leur consommation en est également très réduite. Le chapitre suivant sera consacré à ces capteurs.



## CAPTEUR À ONDES ÉLASTIQUES DE SURFACE POUR LA MESURE DE PARTICULES

Les dispositifs à ondes élastiques ont été largement utilisés lors des trois dernières décennies du fait notamment de l'essor de la téléphonie mobile qui a favorisé l'utilisation des filtres à ondes élastiques de surface. Ces dispositifs SAW sont aussi très utilisés en tant que capteurs car ils présentent plusieurs avantages en termes de sensibilité, taille et coût.

Dans ce deuxième chapitre, le développement de capteurs à ondes élastiques de surface pour la détection des particules de pollution atmosphérique sera considéré. Nous commencerons ce chapitre par introduire des généralités sur les ondes élastiques et leur propagation dans les solides en faisant une distinction entre les deux types d'ondes élastiques qui sont les ondes de volume et les ondes de surface. Les capteurs à ondes élastiques étant tous basés sur des matériaux piézoélectriques, les principes de base de la piézoélectricité seront présentés. Ces principes permettront de comprendre les mécanismes de génération des ondes élastiques ainsi que leur propagation dans les cristaux piézoélectriques. Ces fondamentaux acquis, les capteurs à ondes élastiques seront étudiés en se focalisant plus précisément sur les capteurs à ondes élastiques de surface. Nous présenterons les différentes caractéristiques de cette technologie qui la rendent très attractive pour l'application visée. Les différentes étapes de conception puis de fabrication de ce type de dispositifs seront développées. Enfin, leur capacité à réaliser la détection en temps réel des particules fines dans l'air sera démontrée expérimentalement.

### 2.1/ LES ONDES ÉLASTIQUES DANS LES SOLIDES

Afin de comprendre les principes théoriques de la propagation des ondes élastiques, il est nécessaire de commencer par définir de manière générale les ondes puis de formuler l'équation d'onde acoustique. Ensuite, seront étudiées les ondes élastiques et leur propagation dans les solides.

### 2.1.1/ DÉFINITIONS

#### 2.1.1.1/ ÉQUATION D'ONDE

Dans un milieu en équilibre, une perturbation de cet état d'équilibre se propageant au cours du temps est appelée une **onde**. Dans un milieu isotrope, où la propagation est identique selon toutes les directions, l'équation d'onde est donnée par :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - c^2 \Delta u = 0, \quad (2.1)$$

où  $c$  est la célérité ou la vitesse de l'onde, exprimée en  $m/s$ . Dans un milieu anisotrope où la vitesse varie selon la direction de propagation, l'équation 2.1 devient :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - \sum_{i,j=1}^3 c_{ij}^2 \frac{\partial u}{\partial x_i} \frac{\partial u}{\partial x_j} = 0, \quad (2.2)$$

où  $c_{ij}$  est la célérité dépendante de la direction de propagation.

Avant d'entrer dans le vif du sujet, nous ajoutons une petite précision concernant le vocabulaire afin de lever l'ambiguïté entre les termes "acoustique" et "élastique". En langue anglaise, le terme "acoustic" désigne aussi bien les ondes dans les fluides que dans les solides alors qu'en français, nous lui préférons le terme "élastique" pour décrire les ondes se propageant dans les solides.

#### 2.1.1.2/ LES ONDES ACOUSTIQUES

Dans un fluide continu, une perturbation mécanique donne naissance à une onde acoustique. Si  $u$  est le déplacement local des molécules du fluide et  $\delta p$  la variation de pression associée ( $p(t) = p_0 + \delta p$ ), une onde acoustique sera définie par l'équation :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - c^2 \Delta u = 0 \quad \text{ou} \quad \frac{\partial^2 (\delta p)}{\partial t^2} - c^2 \Delta (\delta p) = 0 \quad (2.3)$$

Dans ce cas la célérité peut s'écrire  $c = (\rho_0 \chi)^{-\frac{1}{2}}$  où  $\rho_0$  est la densité du fluide et  $\chi$  sa compressibilité. Dans l'eau,  $c$  prend la valeur 1480 m/s, alors que dans l'air, elle sera de 343 m/s. Nous considérons, en général, le cas d'une onde plane et harmonique, c'est à dire une onde dont le front est considéré comme un plan infini (cf. figure 2.1). La solution de l'équation d'onde acoustique  $u(t, r)$  est alors donnée par :

$$u(t, r) = \hat{u} e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}, \quad (2.4)$$

où  $w = 2\pi f$  est la pulsation et  $\vec{k}$  le vecteur d'onde définissant la direction de propagation.

Une onde acoustique est caractérisée par sa longueur d'onde  $\lambda$ , sa célérité  $c$  et par son amplitude  $\hat{u}$ .

Une caractéristique importante des ondes acoustiques dans un fluide idéal est qu'elles n'admettent que la polarisation longitudinale, c'est-à-dire que les déplacements sont parallèles à la direction de propagation. Par conséquent, les ondes transverses ne se propagent pas du tout dans les fluides.

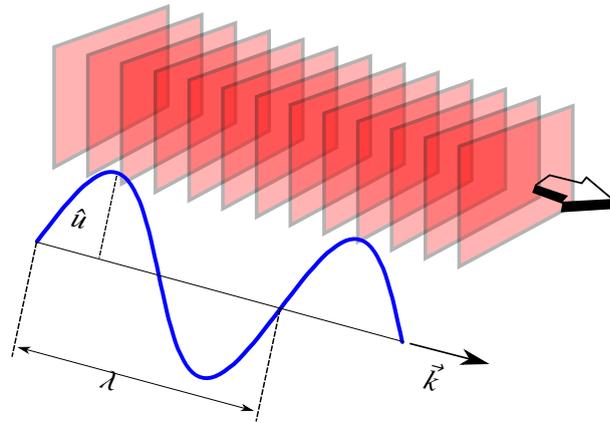


FIGURE 2.1 – Schéma représentatif d'une onde plane harmonique

### 2.1.1.3/ LES ONDES ÉLASTIQUES

Dans le cas des ondes se propageant dans les solides, nous parlons alors d'ondes élastiques. Celles-ci sont des ondes mécaniques dites progressives : elles transportent de l'énergie sans transporter de matière. Les matériaux solides ont des propriétés élastiques lorsqu'ils sont soumis à de faibles contraintes, ils obéissent par conséquent à la loi de Hooke [76]. Une onde élastique induit un changement relatif de la position des atomes du matériau par rapport à leur position d'équilibre, il s'agit d'une déformation de la maille cristalline [77]. Cette déformation engendre une contrainte mécanique non uniforme qui, à son tour, génère un moment mécanique dans son voisinage donnant naissance à une déformation mécanique, et ainsi de suite [78]. Dans le cas des ondes élastiques dans un solide, nous considérons deux grandeurs tensorielles [79] :

- Le tenseur des contraintes mécaniques  $T_{ij}$ . Il s'agit d'une force à trois composantes exercée sur un élément de surface repéré par les composantes de sa normale.
- Le tenseur des déformations  $S_{ij}$  correspondant au déplacement de deux points matériels voisins.

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (2.5)$$

L'équation d'onde est directement déduite de la conservation de la quantité de mouvement issue de deuxième loi de Newton [80] :

$$\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \rho F + \nabla T_{ij} \quad (2.6)$$

En l'absence de forces extérieures, cette relation devient :

$$\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} - \nabla T_{ij} = 0 \quad (2.7)$$

La relation entre les tenseurs des contraintes mécaniques et celui des déformations est donnée par la loi de Hooke généralisée :

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} \quad (2.8)$$

avec  $c_{ijkl}$  le tenseur des rigidités de rang 4 ayant donc  $3^4 = 81$  composantes.

Pour des raisons de symétrie expliquées dans le livre de référence de Royer et Dieulesaint [81], nous avons :

$$\begin{cases} T_{ij} = T_{ji} \text{ et } S_{kl} = S_{lk} \\ c_{ijkl} = c_{jikl} \text{ et } c_{ijkl} = c_{ijlk} \end{cases} \quad (2.9)$$

La loi de Hooke peut donc s'exprimer par :

$$T_{ij} = c_{ijkl} \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \quad (2.10)$$

En appliquant la loi de Hooke dans l'équation 2.7, l'équation d'onde élastique dans un milieu anisotrope peut être décrite par la formule 2.11 :

$$\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} \quad (2.11)$$

En considérant des ondes planes harmoniques de la forme  $u_i(t, r) = \hat{u}_i e^{i\omega(t - s\vec{n} \cdot \vec{r})}$  avec  $s$  la lenteur de l'onde définie comme l'inverse de la vitesse  $s = 1/v = k/\omega$ , nous obtenons alors l'équation de Christoffel [81].

$$\rho \hat{u}_i = s^2 c_{ijkl} n_j n_k \hat{u}_l \quad (2.12)$$

En introduisant le tenseur symétrique de Christoffel  $\Gamma_{il} = c_{ijkl} n_j n_k$ , l'équation 2.12 devient un problème aux valeurs propres donné par :

$$\rho \hat{u}_i = s^2 \Gamma_{il} \hat{u}_l \quad (2.13)$$

C'est cette dernière forme qui est utilisée dans les simulateurs et calculateurs numériques afin d'étudier les modes de propagation.

Deux types d'ondes élastiques peuvent être distinguées : les ondes de volume et les ondes de surface.

## 2.1.2/ LES ONDES ÉLASTIQUES DE VOLUME

Ces ondes élastiques se propagent dans tout le volume d'un solide homogène. Dans un solide isotrope, l'équation de propagation peut être décomposée en deux parties indépendantes donnant naissance à deux ondes (ou modes). La première est de polarisation longitudinale, correspondant à une suite de compressions et de dilatations. La seconde est une onde transversale ou de cisaillement. Dans le cas d'un solide anisotrope, tel un cristal, l'équation de propagation admet trois solutions et donc trois ondes (ou modes) élastiques [82] : une onde majoritairement longitudinale et deux modes majoritairement transversaux.

Dans les ondes longitudinales, les déplacements sont colinéaires à la direction de propagation :  $\vec{k} \parallel \vec{u}$  (cf. figure 2.2). Ce type d'onde existe aussi bien dans les solides que dans les fluides. Comme ce sont des ondes de volume, elles ne se propagent que dans un milieu homogène. Les ondes de ce type, appelées aussi P, sont dites de compression car leur déplacement est lié à une variation de volume [83].

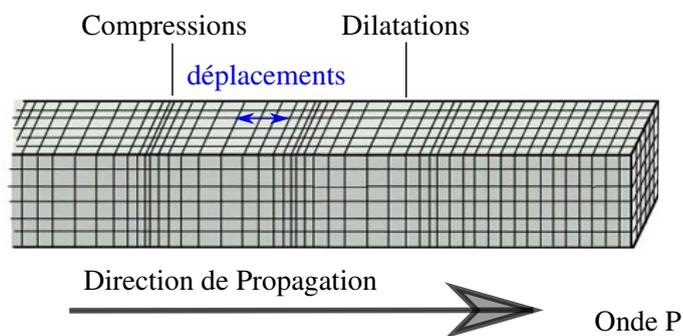


FIGURE 2.2 – Représentation d'une onde longitudinale.

Les ondes transverses, appelées aussi ondes S, sont des ondes de cisaillement (cf. figure 2.3). À l'instar des autres ondes de volume, elles se propagent uniquement dans un milieu homogène mais contrairement aux ondes de type P, le déplacement n'est pas lié à une variation de volume. Dans les solides isotropes, deux polarisations orthogonales ayant les mêmes fréquence, direction et vitesse de propagation coexistent : nous parlons dans ce cas d'ondes dégénérées. Dans le cas des solides anisotropes en revanche, les deux modes de cisaillement sont distincts : l'un est horizontal et l'autre est vertical.

Lorsqu'une onde élastique passe à travers l'interface entre deux milieux d'impédances acoustiques différentes, deux nouvelles ondes apparaissent : une onde réfractée passant dans le second milieu et une onde réfléchie dans le premier. Ce mécanisme, similaire à celui des ondes optiques, obéit à la loi de Snell-Descartes [84] :

$$\frac{\sin\theta}{V} = \frac{\sin\theta'}{V'}, \quad (2.14)$$

$V$  et  $V'$  étant respectivement les vitesses de propagation des ondes incidente et réfléchie et  $\theta$ ,  $\theta'$  les angles correspondants. En outre, lorsqu'une onde longitudinale atteint l'interface entre deux milieux, une partie de l'énergie peut susciter un mouvement de particules dans la direction trans-

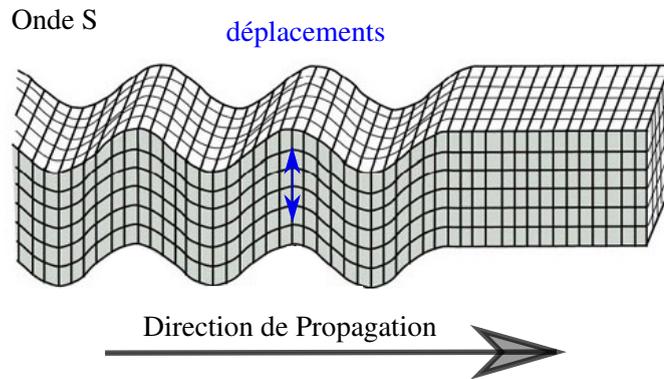


FIGURE 2.3 – Représentation d’une onde transverse.

versale et donner ainsi naissance à une onde de cisaillement. Par conséquent, à l’interface entre deux milieux isotropes, une onde de polarisation longitudinale pure incidente ( $V_{L1}, \theta_1$ ) donne naissance à deux ondes réfléchies (une longitudinale  $V'_{L1}, \theta_1$  et une de cisaillement  $V'_{S1}, \theta_3$ ) ainsi qu’à deux ondes réfractées (une longitudinale  $V_{L2}, \theta_2$  et une de cisaillement  $V_{S2}, \theta_4$ ). Ce phénomène est schématisé dans la figure 2.4. Dans le cas de milieux anisotrope, trois ondes réfléchies et trois ondes réfractées (deux ondes de cisaillement et une onde longitudinale) seront créées. Il est à noter que dans tous les cas, la fréquence et la projection du vecteur d’onde sur l’interface sont conservées [83].

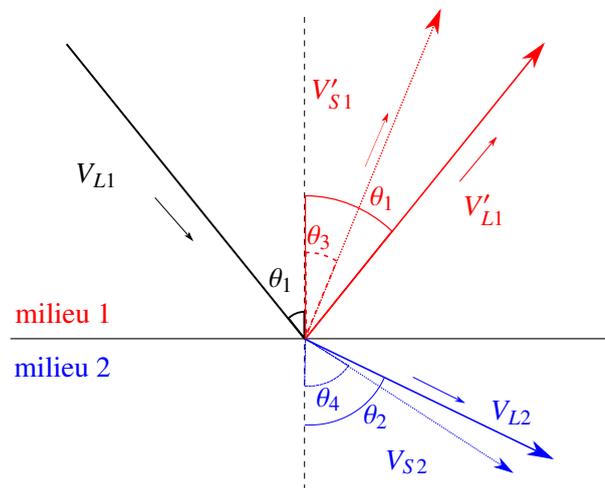


FIGURE 2.4 – Schéma de réflexion/réfraction d’une onde longitudinale à l’interface entre deux milieux isotropes

### 2.1.3/ LES ONDES ÉLASTIQUES DE SURFACE

Une onde de surface correspond à une solution de l’équation d’onde respectant les conditions aux limites sur la surface d’un milieu semi-infini surmonté du vide. Ce sont donc des ondes pour lesquelles les déformations du matériau sont induites uniquement en surface, dans une épaisseur limitée à quelques longueurs d’ondes, leur amplitude diminuant exponentiellement dans la profon-

leur du volume. Les ondes de surface engendrent deux types de déformation. L'une est longitudinale et l'autre transverse. Le type de déformation dépend de la nature du milieu et de la source de l'excitation. Dans ce travail, seulement deux types d'ondes élastiques seront étudiées : les ondes de Rayleigh et les ondes de Love. Il existe toutefois d'autres types d'ondes de surface notamment les ondes de Lamb [85] ou les ondes de Bleustein-Gulyaev [86].

### 2.1.3.1/ ONDES DE RAYLEIGH

C'est en 1885 que John William Strutt, plus connu sous le nom de Lord Rayleigh, démontra mathématiquement l'existence de ces ondes, nommées d'après lui, en étudiant la propagation des ondes élastiques dans les solides dans le cadre de l'activité sismique terrestre [87]. Ce sont des ondes de surface qui peuvent exister aussi bien dans les solides que dans les fluides (mouvement des vagues par exemple). Ces ondes peuvent se propager dans un milieu isotrope ou anisotrope. Leur énergie évolue en profondeur dans le volume approximativement suivant la loi 2.15 [88].

$$E \propto e^{-2\pi\frac{y}{\lambda}}, \quad (2.15)$$

où  $\lambda$  et  $y$  sont respectivement la longueur d'onde et la position dans le volume. Cette relation permet de montrer que la majeure partie de l'énergie est confinée dans une profondeur équivalente à quelques longueurs d'ondes sous la surface. Ces ondes ont également la capacité à se propager sur la surface avec de faibles pertes. En effet, leur énergie décroît en  $\frac{1}{\sqrt{r}}$ . Leur polarisation est dite elliptique car le déplacement a une double composante : l'une est longitudinale et l'autre transverse verticale déphasées de  $\frac{\pi}{2}$ . La déformation du matériau se produit dans le plan sagittal, défini par la direction de propagation et la normale à la surface du matériau (cf. figure 2.5). Les ondes de Rayleigh se distinguent aussi par le fait qu'elles sont non-dispersives, c'est-à-dire que leur vitesse de propagation ne dépend pas de la fréquence [82].

Onde de Rayleigh

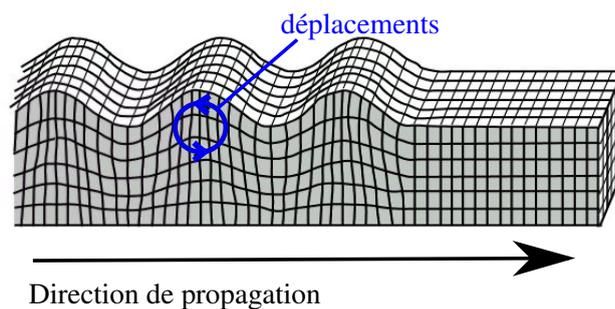


FIGURE 2.5 – Représentation de l'onde de Rayleigh. La direction de propagation est indiquée par la flèche alors que le déplacement ponctuel, de nature rétrograde, est représenté par l'ellipse.

### 2.1.3.2/ ONDES DE LOVE

Les ondes de Love, découvertes par le géophysicien anglais Augustus Edward Hough Love en 1911 [89], désignent un mode de polarisation transverse d'une onde de surface dispersive [79] dans un substrat composite [83]. Ce type d'onde se propage dans l'interface entre une couche isotrope, dite guidante, et un substrat. Comme le montre l'image de la figure 2.6, cette onde est purement de type transverse horizontale couramment notée SH.

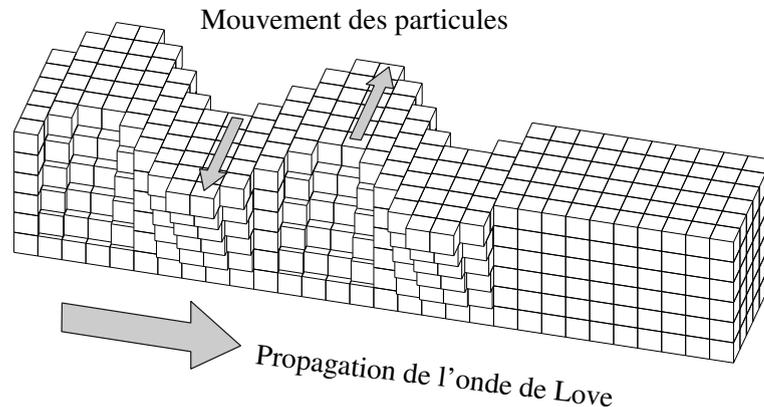


FIGURE 2.6 – Représentation du mouvement des particules par rapport à la direction de propagation dans le cas d'une onde de Love.

L'onde de Love est guidée à la surface inférieure de la couche et continue à se propager à condition que l'onde diffractée soit évanescence dans le volume [82]. Par conséquent, la vitesse de l'onde de Love sera comprise entre  $V_T$  et  $\hat{V}_T$  qui sont respectivement les vitesses d'ondes transversales de volume du substrat et celle de la couche guidante. L'apparition des ondes de Love nécessite alors que la vitesse de l'onde dans le substrat soit supérieure à celle de la couche guidante (cf. figure 2.7).

L'amplitude des déplacements décroît exponentiellement dans la profondeur, mais contrairement aux ondes de Rayleigh, ce déplacement n'est pas lié à une variation de volume. Ce type d'onde est particulièrement redouté en sismologie car il provoque un ébranlement horizontal causant de nombreux dégâts [83].

## 2.2/ PIÉZOÉLECTRICITÉ

### 2.2.1/ DÉFINITION

L'origine étymologique du terme piézoélectricité vient du mot grec "piézein" signifiant presser. La piézoélectricité est la propriété qu'ont certains matériaux cristallins à se charger électriquement lorsqu'ils sont soumis à une contrainte mécanique et inversement. Cet effet est dû à la structure même de ces matériaux. Pour qu'un cristal soit piézoélectrique, il doit présenter une dissymétrie dans la disposition des charges électriques. Sous l'effet d'une contrainte mécanique, les centres des charges positives et négatives vont se déplacer générant une tension proportionnelle à

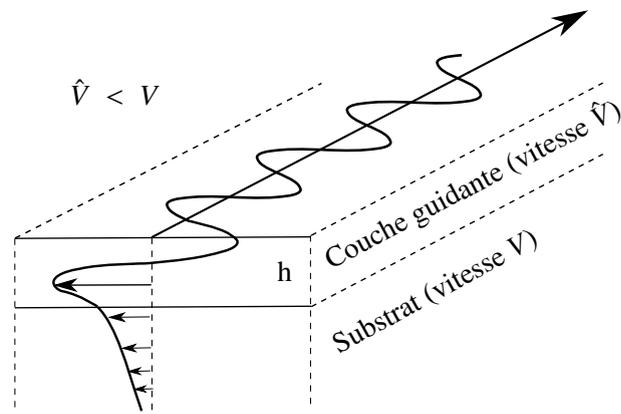


FIGURE 2.7 – Représentation d’une onde de Love se propageant à l’interface entre une couche guidante et un substrat [83].

la contrainte exercée. Ce phénomène est appelé **effet piézoélectrique direct**. Si une tension est appliquée à ces mêmes matériaux, la structure cristalline change et une déformation est engendrée. Nous parlons dans ce cas d’**effet piézoélectrique inverse**. Sur la figure 2.8 sont schématisés les effets piézoélectriques direct et inverse.

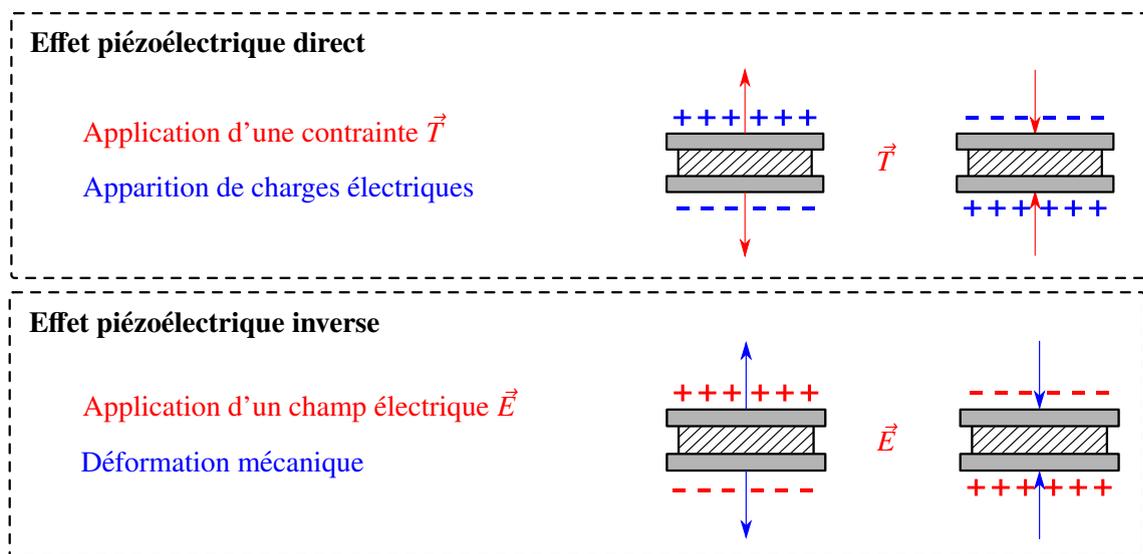


FIGURE 2.8 – Schéma de principe des effets piézoélectriques directe et inverse

Ce sont Pierre et Jacques Curie qui découvrirent, pour la première fois, l’effet piézoélectrique direct en 1880 [90, 91]. En 1881, Gabriel Lippmann prédit l’existence de l’effet inverse [92] mais ce fut encore les frères Curie qui le prouvèrent expérimentalement quelque temps après [93].

La piézoélectricité a été, pendant plusieurs années, un sujet d’étude et de recherche uniquement. Mais en 1917, durant la Première Guerre Mondiale, Paul Langevin appliqua pour la première fois ce principe à l’aide de transducteurs à quartz pour l’émission et la détection sous marine.

Il s'agissait du développement du tout premier sonar. Quelques années plus tard, Walter Cady réalisa le premier oscillateur à quartz [94] relançant ainsi l'intérêt pour cette technologie. Au fil des ans, le nombre de dispositifs utilisant la piézoélectricité a sans cesse augmenté. Les résonateurs piézoélectriques sont présents dans quasiment n'importe quel système électronique (montre, téléphone ...). En effet, leur faibles pertes permettent d'emmagasiner de l'énergie élastique pendant un grand nombre d'oscillations de l'onde, donnant donc la possibilité d'obtenir des fréquences très pures. Les matériaux piézoélectriques servent également à l'élaboration de capteurs notamment de température ou de pression mais également d'actionneurs très précis. Par ailleurs, nous verrons au cours de la lecture de ce manuscrit que l'effet piézoélectrique est fondamental dans l'utilisation des dispositifs à ondes élastiques que ce soit pour une application capteurs ou filtres.

Les propriétés piézoélectriques sont naturellement présentes dans beaucoup de matériaux cristallins. Le plus connu d'entre eux est le quartz. Nous pouvons également citer la tourmaline, la topaze, le sel de Rochelle, le sucre, ... etc. Des matériaux piézoélectriques de synthèse ont également été développés comme le PZT, le niobate de lithium, le tantalate de lithium, l'orthophosphate de gallium, la langasite, la langatate ... [95].

### 2.2.2/ CARACTÉRISTIQUES DES MATÉRIAUX PIÉZOÉLECTRIQUES

La capacité des matériaux piézoélectriques à convertir l'énergie mécanique en énergie électrique, et vice-versa, est caractérisée par le coefficient de couplage électromécanique  $k$  [88] :

$$k = \sqrt{\frac{E_{meca}}{E_{elec}}} \quad \text{ou} \quad k = \sqrt{\frac{E_{elec}}{E_{meca}}} \quad (2.16)$$

selon que potentiel électrique est appliqué en entrée ou la contrainte mécanique. Ce coefficient de couplage électromécanique est généralement exprimé au carré  $k^2$  :

$$k^2 = \frac{E_{meca}}{E_{elec}} \quad (2.17)$$

L'équation 2.16 peut être remplacée par celle de la norme IEEE<sup>1</sup> utilisant les fréquences de résonance et d'anti résonance  $f_r$  et  $f_a$  [96]. Cette problématique est traitée en détail dans le livre de Michel Brissaud sur les matériaux piézoélectriques [97].

$$k^2 = \frac{\pi^2}{4} \cdot \frac{f_r - f_a}{f_r} \quad (2.18)$$

Le couplage électromécanique dépend du matériau piézoélectrique et de la coupe cristalline choisie. Dans le tableau 2.1 sont donnés les coefficients  $k^2$  des coupes cristallines des matériaux piézoélectriques couramment utilisés.

---

1. Institute of Electrical and Electronic Engineers

Matériau	Coupe	$k^2$
Quartz	AT	0.14 %
LiNbO <sub>3</sub>	Y-Z	4.8 %
LiNbO <sub>3</sub>	Y+128°-X	5.5 %
Li <sub>2</sub> TaO <sub>3</sub>	Y+36°-X	7.25 %

TABLE 2.1 – Tableau indiquant les coefficients de couplage électromécanique dans les matériaux usuels [98].

### 2.2.3/ PROPAGATION DES ONDES ÉLASTIQUES DANS LES SOLIDES PIÉZOÉLECTRIQUES

Les matériaux piézoélectriques sont composés de cristaux anisotropes. Les ondes élastiques s'y propagent en ayant trois composantes provenant des trois degrés de liberté  $u_i$ . À travers l'effet piézoélectrique, un quatrième degré de liberté vient s'ajouter dans l'équation d'onde donnant naissance à une quatrième composante : le potentiel électrique  $\phi$  [83]. Un champs électrique dérivant d'un potentiel,  $E_k = -\frac{\partial\phi}{\partial x_k}$ , vient donc s'ajouter à la loi de Hooke :

$$\begin{cases} T_{ij} = c_{ijkl}S_{kl} - e_{kij}E_k \\ D_j = e_{jkl}S_{kl} - \varepsilon_{jk}E_k \end{cases}, \quad (2.19)$$

où  $e_{ikl}$  est le tenseur des constantes piézoélectriques,  $D_j$  le déplacement électrique et  $\varepsilon_{jk}$  le tenseur des constantes diélectriques.

Le matériau étant non conducteur,  $\frac{\partial D_j}{\partial x_j} = 0$ . Nous obtenons alors les formules :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} + e_{jkl} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_j \partial x_k} \quad (2.20)$$

et

$$e_{jkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} - \varepsilon_{jk} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x_j \partial x_k} = 0 \quad (2.21)$$

Dans le cas des ondes planes harmoniques, les équations précédentes peuvent se mettre sous la forme :

$$\begin{cases} \rho \hat{u}_i = s^2 (\Gamma_{il} \hat{u}_l + \gamma_i \hat{\phi}) \\ \gamma_l \hat{u}_l = \varepsilon \hat{\phi} \end{cases} \quad (2.22)$$

avec  $\gamma_i = e_{kij} n_j n_k$  et  $\varepsilon = \varepsilon_{jk} n_j n_k$ . Au final, en éliminant le potentiel  $\phi$  et en introduisant, comme pour le cas non-piézoélectrique, le tenseur de Christoffel aux constantes durcies  $\bar{\Gamma}_{il}$ , est obtenue l'équation aux valeurs propres 2.23 [83] :

$$\rho \hat{u}_i = s^2 \bar{\Gamma}_{il} \hat{u}_l \quad \text{où} \quad \bar{\Gamma}_{il} = \Gamma_{il} + \frac{\gamma_i \gamma_l}{\varepsilon} \quad (2.23)$$

## 2.3/ LES CAPTEURS À ONDES ÉLASTIQUES

Comme expliqué précédemment, les matériaux piézoélectriques sont utilisés pour de nombreuses applications : actionneurs, résonateurs ... etc. Une des applications importantes est celle des capteurs. Dans ce cas, l'effet piézoélectrique inverse est utilisé pour générer les ondes élastiques à partir d'une tension électrique et l'effet direct sert, quant-à lui, à récupérer les signaux électriques générés à partir des déformations des matériaux.

Ce type de capteurs à ondes élastiques a l'avantage d'offrir de nombreuses caractéristiques intéressantes. Tout d'abord, étant de petites dimensions, ceux-ci peuvent être fabriqués collectivement à partir de wafers<sup>2</sup> en utilisant les technologies disponibles en salle blanche. Celles-ci rendent possible leur réalisation à faible coût et en grande quantité. Ensuite, ces matériaux piézoélectriques permettent d'utiliser les capteurs à des températures relativement élevées : 300°C voire 1500 °C [99, 100]. Leur aspect passif les rend très peu gourmands d'un point de vue énergétique et leur permet aussi d'être potentiellement interrogeables à distance [101, 102]. En outre, les matériaux piézoélectriques ont la particularité d'être peu sensibles aux champs magnétiques.

Les dispositifs basés sur les ondes élastiques permettent de détecter de manière précise les perturbations mécaniques. Leur sensibilité, exprimée en  $\text{cm}^2/\text{g}$ , est donnée par la relation 2.24 qui relie un décalage relatif de fréquence  $\frac{\Delta f}{f_0}$  à la masse ajoutée  $\Delta m$  sur la surface active  $A$  des capteurs. De la sorte, il est possible de mesurer la masse déposée sur la surface du capteur par l'intermédiaire d'une mesure fréquentielle.

$$S = \frac{\Delta f}{f_0} \cdot \frac{A}{\Delta m} \quad (2.24)$$

Ces capteurs exploitent soit la propagation des ondes élastiques de volume soit celle des ondes élastiques de surface. Nous présentons d'abord de manière succincte les capteurs à ondes de volume pour ensuite étudier en détail ceux fondés sur les ondes de surface qui sont l'objet de cette thèse.

### 2.3.1/ CAPTEUR À ONDES ÉLASTIQUES DE VOLUME

Les dispositifs à ondes de volume, appelés aussi couramment BAW<sup>3</sup>, exploitent comme leur nom l'indique, les ondes élastiques qui se propagent dans tout le volume du substrat. Pour générer ces ondes, il est nécessaire d'exciter ces dispositifs via des électrodes pleines situées de part et d'autre du substrat. La configuration généralement retrouvée est celle de "résonateur". Dans ce cas, c'est la mesure de la variation de fréquence qui permet de remonter au mesurande. Dans cette section sera présenté trois types de dispositifs à ondes de volume. D'abord le plus largement utilisé, en l'occurrence la microbalance à quartz ou QCM, ensuite le FBAR<sup>4</sup> et le HBAR<sup>5</sup>

---

2. plaques ou tranches

3. Bulk Acoustic Waves

4. Film Bulk Acoustic wave Resonator

5. High overtone Bulk Acoustic wave Resonator

## 2.3.1.1/ LA MICROBALANCE À QUARTZ

C'est en 1959 que Günter Sauerbrey réalisa, pour la première fois, une détection gravimétrique par le biais d'un dispositif à ondes de volume [103]. Sur la figure 2.10 est présenté le principe de mesure d'une QCM. Un potentiel, appliqué aux bornes des électrodes métalliques, va induire un champ électrique dans le matériau piézoélectrique entraînant ainsi une déformation (cf. figure 2.9). Cette déformation engendre la création d'une onde élastique se propageant dans le volume de la balance à quartz avec une vitesse  $c$  à la fréquence  $f$  ( $c = f.\lambda$ ). La vitesse dépend de la nature du substrat piézoélectrique utilisé ainsi que de son orientation cristalline.

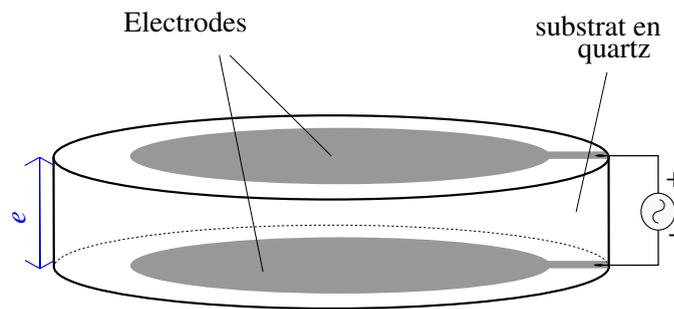


FIGURE 2.9 – Schéma d'une microbalance à quartz (QCM)

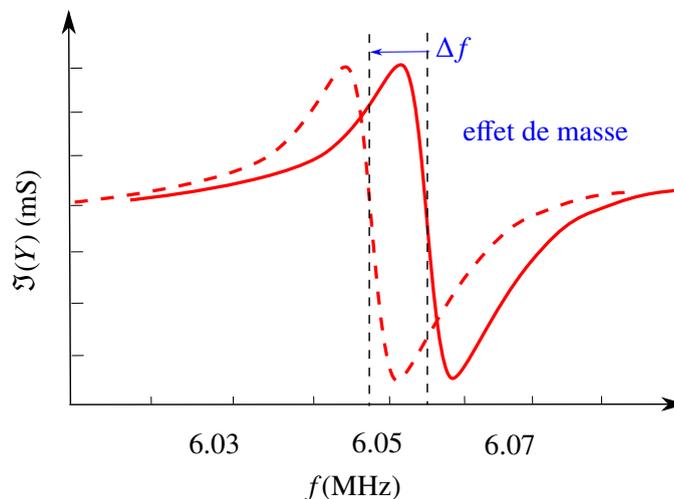


FIGURE 2.10 – Représentation de l'effet de masse dans une microbalance à quartz.

Pour satisfaire les conditions aux limites nécessaires à la mise en place d'un phénomène de résonance, le cristal doit être excité avec un signal dont la fréquence correspond à un nombre impair de demi longueurs d'ondes. Ainsi l'onde sera piégée par réflexion entre les deux interfaces substrat/air du disque piézoélectrique [104, 105]. Plusieurs modes peuvent être excités mais le mode généralement retenu est le mode de cisaillement d'épaisseur ou TSM<sup>6</sup> [106]. Si  $e$  est

---

6. Thickness Shear Mode

l'épaisseur du disque, cette fréquence est donnée par l'équation 2.25.

$$f_r = \frac{(2n + 1).v}{2e} \quad (2.25)$$

Nous pouvons noter que la fréquence est dépendante de l'épaisseur et donc limitée technologiquement par cette dernière. Nous verrons, par la suite, que cela entraîne également une limitation de la sensibilité. Toutefois, certaines techniques d'amincissement permettent d'obtenir des épaisseurs de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$  atteignant ainsi des fréquences de l'ordre de 100 MHz [107].

La sensibilité gravimétrique étant définie par la relation 2.24, celle-ci peut être déterminée par expérience en mesurant le décalage en fréquence correspondant à une masse connue. Une fois la sensibilité du capteur déterminée, la masse absorbée par le dispositif peut être estimée en mesurant le décalage de fréquence obtenu. La difficulté de cette approche est la détermination de la sensibilité uniquement par expérimentation : mesurer  $\Delta f$  connaissant  $\Delta m$ . Dans ses travaux pionniers, Sauerbrey a utilisé une autre approche. Celle-ci consiste à considérer la matière ajoutée non comme une variation de masse  $\Delta m$  sur une surface  $A$  mais plutôt comme une variation d'épaisseur  $\Delta e$  ayant une densité  $\rho$  sur cette même surface  $A$ . La variation de masse peut donc s'exprimer comme :

$$\Delta m = \rho \Delta e A \quad (2.26)$$

En simplifiant  $A$ , la nouvelle expression de la sensibilité devient :

$$S = \frac{\Delta f}{f_0} \cdot \frac{1}{\rho \Delta e} \quad (2.27)$$

Si la QCM fonctionne à une fréquence  $f_0$  correspondant à une longueur d'onde  $\lambda = 2 \times e$  où  $e$  est l'épaisseur du disque (cf. figure 2.9), la sensibilité dans ce cas sera donc donnée par :

$$S = \frac{\Delta f}{f_0} \cdot \frac{2}{\rho \Delta \lambda} \quad (2.28)$$

Si nous supposons que  $\Delta e$  est petit devant  $e$  ( $\Delta e \ll e$ ), nous pouvons donc admettre que la vitesse de l'onde reste la même pour une épaisseur  $e$  ou  $e + \Delta e$  donc  $c = \text{cste}$ . À partir de là, nous pouvons travailler avec l'hypothèse que  $\frac{\Delta f}{f_0} = \frac{\Delta \lambda}{\lambda}$  car  $c = f\lambda$ . Si nous remplaçons  $\frac{\Delta f}{f_0}$  par  $\frac{\Delta \lambda}{\lambda}$  dans l'équation 2.28 :

$$S = \frac{\Delta \lambda}{\lambda} \cdot \frac{2}{\rho \Delta \lambda} = \frac{2f}{\rho c} \quad (2.29)$$

Nous nous retrouvons donc avec une expression de la sensibilité ne contenant pas les termes  $\Delta f$  et  $\Delta m$  qui ne sont définissables qu'expérimentalement. L'expression 2.29 ne dépend alors que des propriétés physiques de la QCM et de la fréquence.

## 2.3.1.2/ FBAR

Le FBAR est un dispositif à ondes élastiques de volume semblable à la QCM. C'est au début des années 1980 que Lakin et Wang présentèrent pour la première fois cette structure [108, 109]. Nous pouvons également citer les travaux de Grudkowski et al. qui développèrent un résonateur fonctionnant dans la gamme comprise entre 200 et 500 MHz [110].

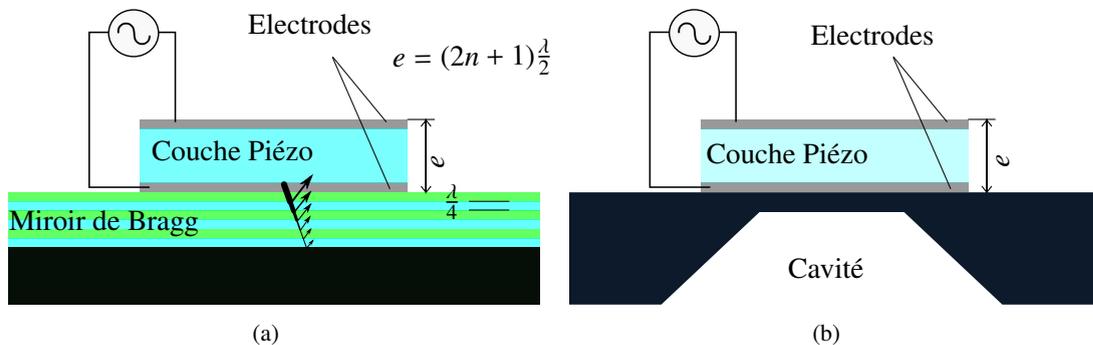


FIGURE 2.11 – Schéma d'un résonateurs FBAR avec un miroir de Bragg (a) et une cavité (b) [111].

Un résonateur de type FBAR peut atteindre des fréquences de fonctionnement allant de 1 à 10 GHz (typiquement 2 GHz). Une étude menée pour caractériser la sensibilité gravimétrique d'un résonateur FBAR à base d'AlN<sup>7</sup> a démontré une sensibilité pouvant atteindre 3000 cm<sup>2</sup>/g [112]. Sur le plan technologique, la couche mince piézoélectrique est en général obtenue par un dépôt sous vide ou plus rarement par rodage et report sur substrat. Cette couche étant mince et donc fragile, elle nécessite une structure de support inutile dans la cas de la QCM (cf. figure 2.11). La couche piézoélectrique se trouve isolée du substrat qui la supporte afin de confiner l'énergie en son sein. Cette isolation est réalisée de deux façons :

- La première approche est celle de la structure appelée SMR<sup>8</sup>. Elle consiste à réaliser un empilement de couches d'impédance acoustique forte et faible (rapport d'impédance supérieur à 3) alternativement en face arrière du résonateur [113]. Il est ainsi possible de réaliser un miroir de Bragg permettant de confiner l'énergie dans le résonateur. Cette structure est représentée dans la figure 2.11(a).
- La seconde, schématisée dans la figure 2.11 (b), consiste à fabriquer le résonateur sur un substrat puis à éliminer ce dernier afin de créer une cavité en face arrière. Le couplage électromécanique avec le gaz contenu dans la cavité se trouve alors quasiment nul (rayonnement presque nul). Le silicium constitue le matériau le plus couramment utilisé en tant que substrat car aisément gravable via la technique de gravure profonde DRIE<sup>9</sup>.

7. Nitride d'aluminium

8. Solidly Mounted Resonators

9. Deep Reactive Ion Etching

## 2.3.1.3/ HBAR

Un résonateur HBAR est un dispositif à ondes élastiques de volume constitué d'un matériau cristallin minimisant les pertes acoustiques, pompé par un transducteur en film mince. D'une structure similaire à celle des FBAR, le HBAR se compose d'une couche piézoélectrique déposée sur un substrat choisi pour ses faibles pertes acoustiques, ce qui permet de maximiser le facteur de qualité de la résonance [114]. La couche piézoélectrique définit l'enveloppe de la réponse correspondant à l'étendue spectrale de la pompe (cf. figure 2.12). Le spectre de raie est quant à lui engendré par la cavité constituée par le substrat au sein duquel toutes les harmoniques (ou modes) paires et impaires sont excitées. L'écart fréquentiel entre ces modes est principalement dicté par les conditions de résonance au sein de la cavité. La génération d'une multitude de résonances constitue un avantage dans le cadre d'une montée en fréquence mais la proximité des résonances rend plus délicate leur exploitation.

Moor et al. ont été les premiers à utiliser des résonateurs HBAR dans des oscillateurs en 1981, à des fréquences allant de 1 à 5 GHz [115]. Des études ont suivi pour étudier leur stabilité fréquentielle [116, 117]. Les HBAR ont également été utilisés pour des applications de filtrage [118].

Dans le cadre d'une application capteur, il est donc envisageable de sonder les propriétés acoustiques d'une couche sensible, déposée en surface du HBAR, sur différents points de son épaisseur. La sensibilité gravimétrique (selon l'approximation de Sauerbrey) ne varie pas selon l'harmonique. En revanche, la montée en fréquence n'est pas pour autant inutile. En effet selon J.M Friedt et al. [119], la profondeur de pénétration  $\sigma$  dépend directement de la fréquence de fonctionnement du HBAR. Une étude détaillée sur la sensibilité gravimétrique de ce type de dispositif a été effectuée dans la thèse de doctorat de David Rabus pour la détection de gaz [114].

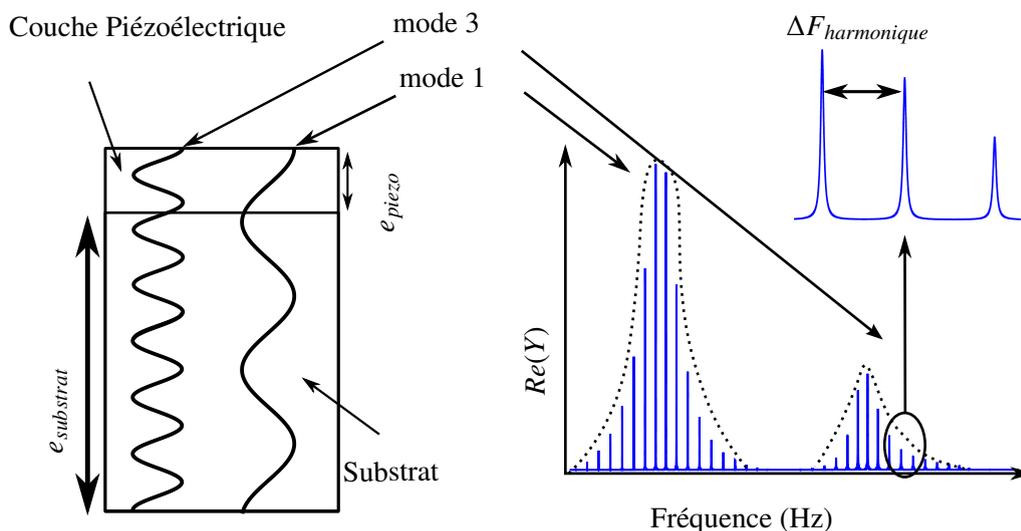


FIGURE 2.12 – Schéma d'un résonateur à ondes de volume de type HBAR (à gauche). Partie réelle de l'admittance en réflexion de la structure (à droite) [114].

## 2.3.2/ LES CAPTEURS À ONDES ÉLASTIQUES DE SURFACE

C'est en 1965 que White et Volmer ont mis au point, pour la première fois, une technique permettant de générer des ondes élastiques de surface sur un substrat piézoélectrique [120]. Le principe est schématisé dans la figure 2.13. Un transducteur, formé de deux peignes interdigités (IDT<sup>10</sup>s) fabriqués d'un matériau conducteur, est déposé à la surface du substrat piézoélectrique. En appliquant une tension sinusoïdale aux bornes des électrodes, il est possible de créer une onde élastique en surface du dispositif par effet piézoélectrique inverse. La longueur d'onde associée  $\lambda$  est définie par la période électrique de l'IDT. Cette onde élastique de surface va pouvoir se propager avec une vitesse  $c = f\lambda$ . Dans le domaine fréquentiel, la réponse impulsionnelle ou fonction de transfert de ce genre de dispositif prend la forme d'un sinus cardinal [121].

$$FT_{IDT} = \text{sinc}\left(\frac{\omega}{2}\right) \quad (2.30)$$

Le nombre d'électrodes influence directement la bande passante  $\Delta f$  du transducteur  $Nb_{\text{paires}} \simeq \frac{f_c}{\Delta f}$  où  $f_c$  est la fréquence centrale de travail [78].

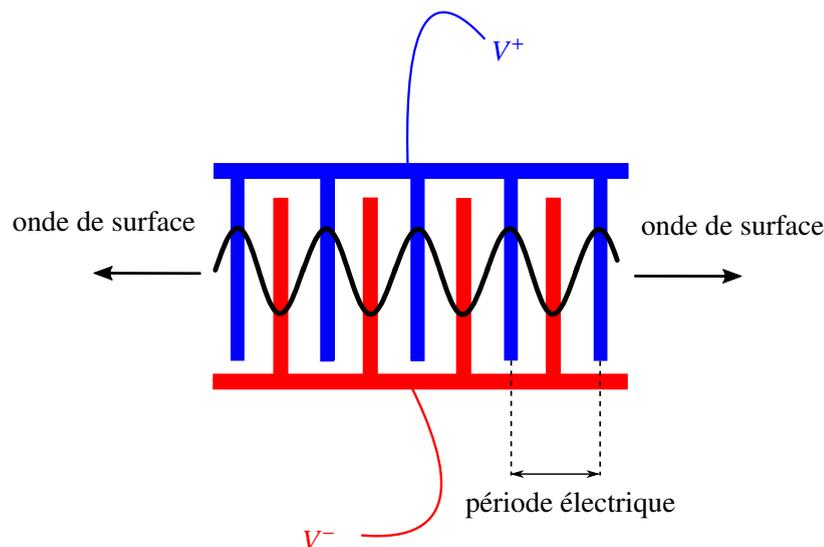


FIGURE 2.13 – Schéma d'un IDT.

Depuis les travaux pionniers, les dispositifs fondés sur les propriétés de ces ondes ont fait l'objet de nombreux développements et sont maintenant largement utilisés à l'échelle industrielle pour diverses applications notamment dans le domaine du filtrage de fréquences. Les téléphones portables en sont un exemple.

Contrairement aux ondes de volume, dont l'énergie se propage dans toute l'épaisseur du substrat, les ondes de surface sont caractérisées par une densité d'énergie localisée dans la couche superficielle avec une pénétration de seulement quelques longueurs d'ondes. Ce confinement d'énergie est à l'origine de la sensibilité de ces dispositifs aux perturbations de surface qui se trouve être l'intérêt majeur de leur utilisation dans notre application.

10. Inter-Digitated Transducer

Les ondes de surface sont donc sensibles à tout élément venant perturber les conditions locales de propagation sur la surface, que ce soit une variation de masse, de température, de pression ... etc. De ce fait, les dispositifs à ondes de surface peuvent ainsi être facilement utilisés comme capteurs. N'étant pas sélectifs de nature, une fonctionnalisation de la surface des capteurs est nécessaire pour permettre une interaction spécifique avec l'élément à détecter. Une couche de palladium a, par exemple, été utilisée par D'amico et Palma pour détecter l'hydrogène en phase gazeuse [122]. Dans le cas de la détection du monoxyde de carbone (CO), la fonctionnalisation a été effectuée par spray de corolles de cobalt dans le cadre des travaux de thèse de Meddy Vanotti de l'équipe CoSyMA<sup>11</sup> [111]; cette couche organique ayant des propriétés similaires à celles de l'hémoglobine dans le sang.

Les capteurs à ondes de surface peuvent être utilisés sous deux configurations différentes : les résonateurs ou les lignes à retard.

### 2.3.2.1/ LES RÉSONATEURS SAW

Tout d'abord, un résonateur est défini, de façon générale, par sa fréquence de résonance  $f_r$  et son facteur de qualité  $Q$ . Ce dernier représente le rapport des énergies emmagasinée et dissipée par le résonateur. Ce facteur de qualité peut être calculé à partir du spectre de conductance, représentant la partie réelle de l'admittance, par le rapport  $Q = \frac{f_r}{\Delta f_{FWHM}}$ , où FWHM<sup>12</sup> représente la largeur de bande totale à mi-puissance, calculée à partir des fréquences correspondant à  $\frac{\Re(Y_{max})}{\sqrt{2}}$  (cf. figure 2.14).

Dans les résonateurs à ondes élastiques de surface, des réflecteurs sont utilisés pour confiner l'onde dans une cavité et créer ainsi un phénomène de résonance. Ces réflecteurs, schématisés dans la figure 2.15, sont composés de miroirs périodiques fonctionnant à la condition de Bragg. Cela signifie que la période électrique du transducteur est égale à deux fois la période mécanique du réseau d'éléments réflecteurs. Dans ce cas, l'onde de surface est renvoyée en phase vers le transducteur émetteur. Le dispositif présente alors une pureté spectrale liée au nombre de miroirs. Les résonateurs à 433 MHz présentent des facteurs de qualité d'environ 10000 alors que ceux fonctionnant à 2,45 GHz ont des Q compris entre 1500 et 3000 [123]. Dans une application "capteur", la modification d'un paramètre physique, tel que la température ou la masse déposée en surface du capteur, entraîne une variation de la fréquence de résonance. Comme dans le cas des microbalances à quartz, une augmentation de la masse du système résonant entraîne un décalage négatif de la fréquence.

En outre, les résonateurs SAW ont l'avantage de permettre la conception de dispositifs de taille très réduite. Dans le cas de dispositifs sans fils, leur distance d'interrogation peut atteindre jusqu'à quelques mètres; cette configuration présentant moins de pertes que les lignes à retard décrites dans la section suivante [124].

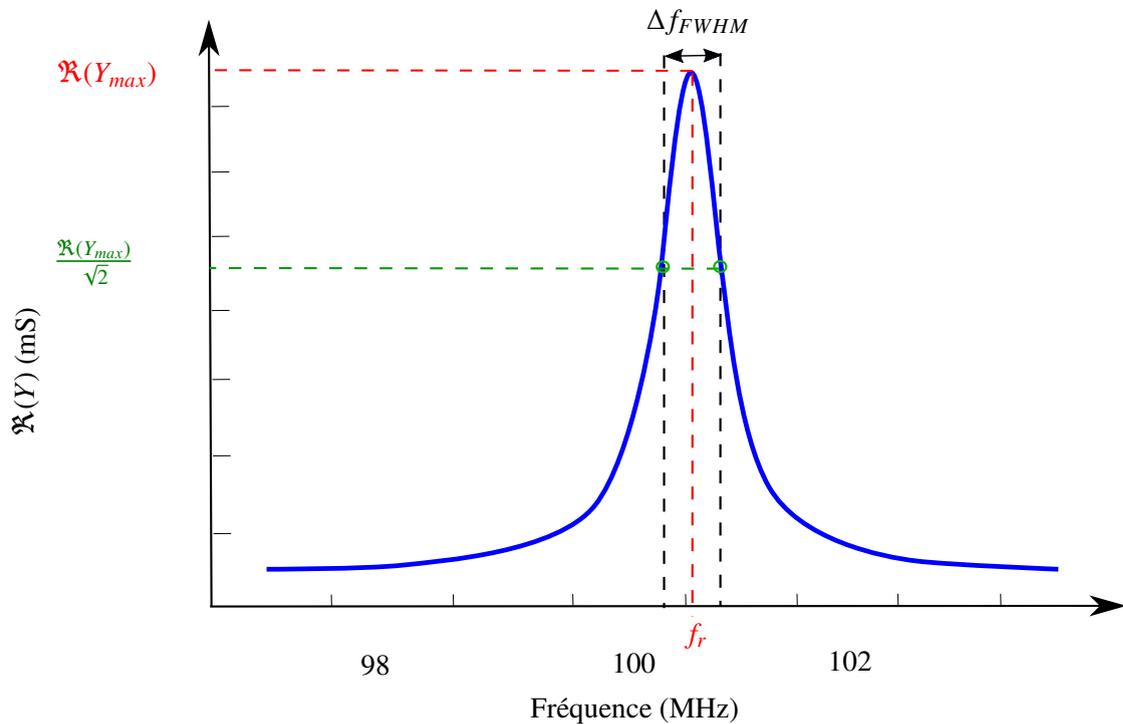


FIGURE 2.14 – Représentation de la conductance  $G$  permettant de déterminer la fréquence de résonance et le facteur de qualité  $Q$ .

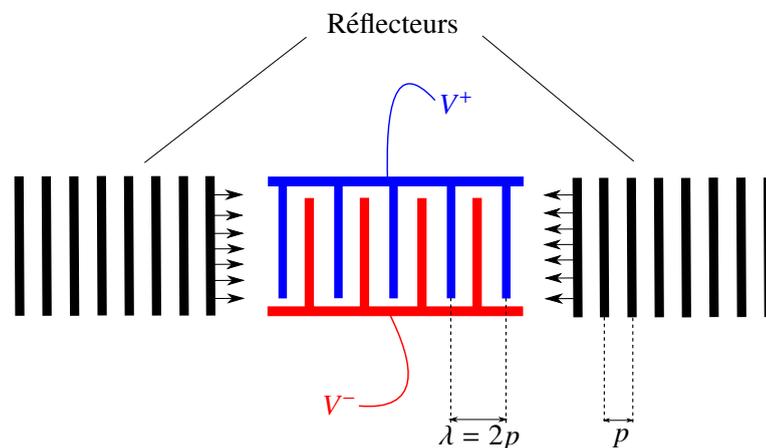


FIGURE 2.15 – Schéma de principe d'un résonateur à ondes élastiques de surface.

### 2.3.2.2/ LES LIGNES À RETARD.

Tout comme les résonateurs SAW présentés ci-dessus, les lignes à retard, schématisées dans la figure 2.16, sont basées sur la transduction d'une onde de surface par l'intermédiaire de peignes interdigités soumis à un signal électrique. La mesure est fondée sur la variation du temps de vol de l'onde élastique de surface entre l'IDT d'entrée et celui de sortie. L'onde élastique se propage

11. Composants et Systèmes Micro-Acoustiques  
12. Full Width at Half Maximum

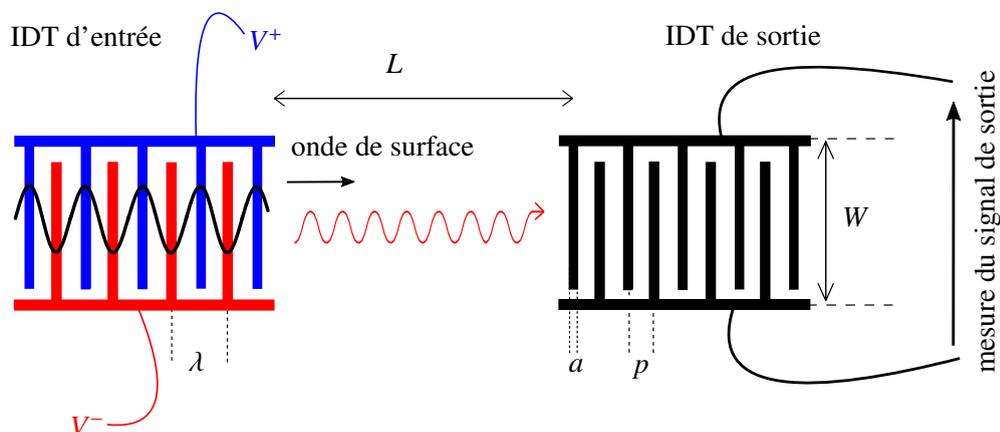


FIGURE 2.16 – Principe général des lignes à retard.

avec une célérité dépendante de la nature du substrat piézoélectrique ainsi que de sa coupe cristalline. En sortie de l'IDT, l'onde peut être mesurée électriquement grâce à l'effet piézoélectrique direct. Lorsqu'une masse supplémentaire est présente sur le chemin de propagation, le temps de vol se verra prolongé d'où le nom de "ligne à retard". Celles-ci offrent l'avantage, par rapport aux résonateurs, de fournir une plus grande surface sensible.

Dans le cadre de nos travaux, nous nous sommes intéressés spécifiquement aux dispositifs à ondes de Love et ceux à ondes de Rayleigh.

### Principe de mesure :

Comme expliqué précédemment, la mesure est basée sur la variation du temps de vol de l'onde. La longueur d'onde  $\lambda$  est fixée par la structure des transducteurs et plus précisément, par la période entre les électrodes. La fréquence de synchronisme d'un tel dispositif est définie comme étant le ratio entre la célérité et la longueur d'onde  $f_c = c/\lambda$ . Le ralentissement de l'onde, dû à un effet de masse, implique donc directement une diminution de la fréquence ; la longueur d'onde restant constante. La variation de célérité est donc estimable à partir d'une mesure fréquentielle. Cependant, la réponse impulsionnelle de forme d'un sinus cardinal présente une courbe relativement plate autour de la fréquence de synchronisme (cf. figure 2.17) rendant difficile la détermination d'une fréquence de synchronisme. Pour contourner cette difficulté, une mesure de phase sera réalisée au lieu d'une mesure de fréquence. En effet, la figure 2.17 montre qu'il existe une relation linéaire entre la phase et la fréquence du dispositif SAW autour de la fréquence centrale. En travaillant à fréquence constante, il est possible de déduire la variation de célérité à partir d'une mesure de phase. Le choix de la fréquence de travail est schématisé dans la figure 2.17 (en vert). Cette fréquence peut être différente de la fréquence centrale ou de synchronisme correspondant à des pertes minimum ; celle-ci étant choisie de manière à être positionnée au milieu d'une zone linéaire de la courbe de phase.

L'autre intérêt d'une mesure de phase est la dispense de réaliser un balayage en fréquence à chaque mesure, permettant donc d'effectuer plusieurs mesures en moins d'une seconde.

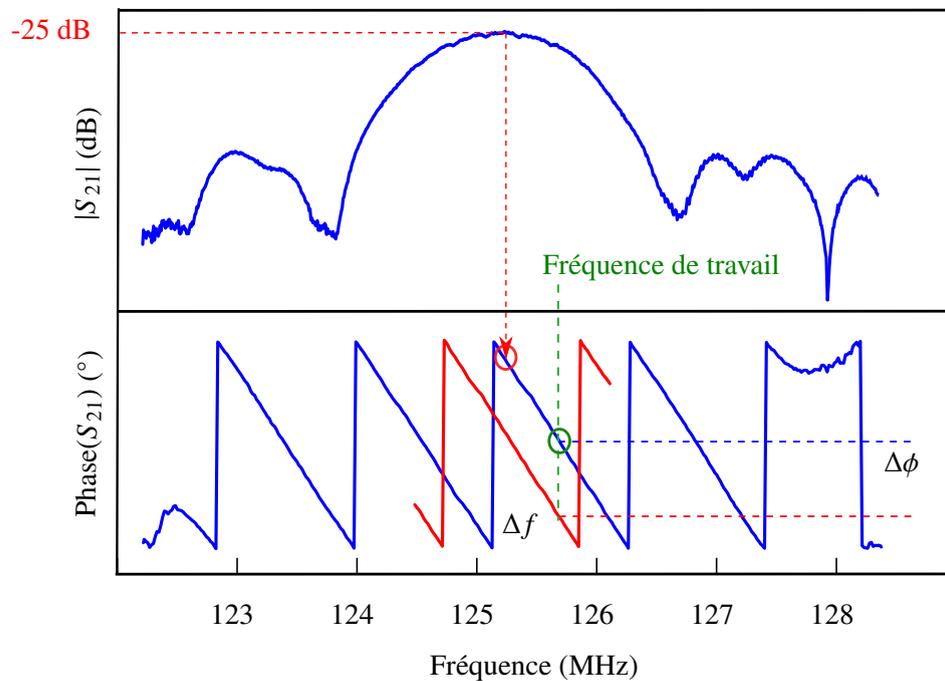


FIGURE 2.17 – Principe général de la mesure de phase à fréquence constante.

### Exploitation des ondes de Rayleigh :

Dans des dispositifs SAW à ondes de Rayleigh, l'énergie élastique se trouve concentrée en surface sur une épaisseur d'environ  $2\lambda$ , offrant ainsi une grande sensibilité aux perturbations de surface. Celle-ci est dépendante de la fréquence des dispositifs. Ainsi, la sensibilité sera de  $130 \text{ cm}^2/\text{g}$  pour un dispositif fonctionnant à 97 MHz [125] et de l'ordre de  $450 \text{ cm}^2/\text{g}$  pour une fréquence de 200 MHz [126]. Cet écart est expliqué par des effets de dissipation du mode dus à la présence d'un corps quelconque sur la surface de propagation. C'est à la fin des années 1970 que Wohltjen et Dessy ont utilisé, pour la première fois, ce type d'onde de surface pour une application capteur [127]. Ce dispositif de type ligne à retard fonctionnait à 34 MHz dans le cadre d'une application de chromatographie en phase gazeuse. L'exploitation de ce type d'ondes est adaptée également à la détection de gaz après fonctionnalisation de la zone sensible [111]. Sur la figure 2.18 est présentée la structure d'un dispositif SAW à ondes de Rayleigh.

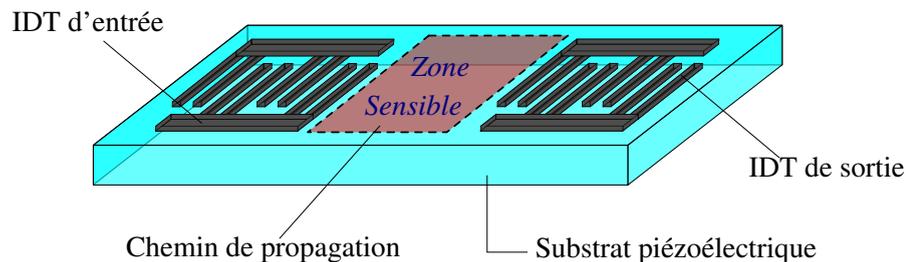


FIGURE 2.18 – Schéma d'un dispositif à ondes de surface de type Rayleigh.

### Exploitation des ondes de Love :

Les ondes de Love sont très utilisées dans les applications capteurs du fait de leur sensibilité gravimétrique. Elles offrent aussi l'avantage, grâce à leur polarisation transverse (cf. section 2.1.3.2), de ne pas se propager dans les fluides ; ceux-ci n'admettant que les polarisations longitudinales (cf. section 2.1.1.2). Ce type de dispositif est ainsi adapté aux applications en milieu liquide, étant donné que le rayonnement est quasi-nul du fait du manque de couplage entre l'onde et le liquide, contrairement aux ondes de Rayleigh. Pour rappel, les ondes de Love sont créées par l'ajout d'une couche guidante sur la surface (cf. figure 2.19) ; la vitesse de propagation de l'onde transversale devant y être inférieure à celle dans le substrat piézoélectrique (cf. section 2.1.3.2).

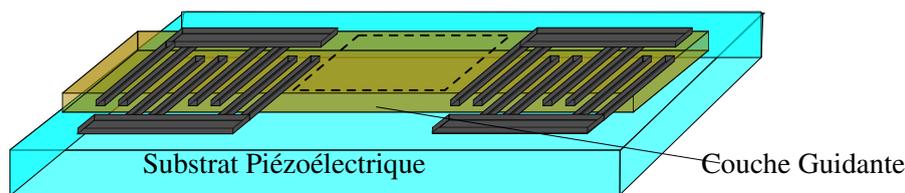


FIGURE 2.19 – Schéma d'un dispositif à onde de surface permettant la génération d'une onde de Love.

Par rapport aux ondes de Rayleigh, le grand intérêt des ondes de Love réside dans le confinement de l'énergie dans la couche guidante permettant ainsi de maximiser la sensibilité aux perturbations de surface par effet de dispersion modale (dépendante de son épaisseur par rapport à la longueur de l'onde acoustique). La profondeur de l'onde dans le substrat de pénétration est de l'ordre de la longueur d'onde. La sensibilité des capteurs gravimétriques à ondes de Love dépend, à la fois, de la fréquence, de la nature de la couche guidante et de l'ajustement de son épaisseur par rapport à la longueur d'onde [128].

Ce sont, dans les années 1990, que les premières études sur les capteurs à ondes de Love apparaissent dans le cadre d'applications (bio)chimiques [129–132]. Au sein de l'équipe CoSyMA de FEMTO-ST, ces dispositifs sont utilisés depuis plusieurs années pour la détection de gaz toxiques notamment l'acide fluorhydrique (HF) [133] et le monoxyde de carbone (CO) [134]. Avec un guide d'onde en silice, la sensibilité gravimétrique mesurée s'élevait alors à  $160 \text{ cm}^2/\text{g}$  pour un dispositif fonctionnant à 100 MHz et à  $450 \text{ cm}^2/\text{g}$  pour une fréquence de fonctionnement de 200 MHz [126].

## 2.4/ CONCEPTION DE CAPTEURS SAW POUR LA MESURE DE PARTICULES FINES

Bowers et Chuan ont été les premiers à montrer l'intérêt d'utiliser des dispositifs SAW pour la mesure de particules fines [135]. Dans leur article de 1989, ils ont démontré qu'un résonateur de type SAW fonctionnant à 158 MHz permettait d'atteindre une sensibilité 266 fois supérieure à celle d'une microbalance à quartz fonctionnant à 10 MHz pour la mesure de particules de  $0,3 \mu\text{m}$  de diamètre. Depuis lors, la seule étude trouvée dans la littérature date de 2014. Hao et al. y montrent théoriquement et numériquement la possibilité de faire de la détection de particules PM<sub>2,5</sub> avec un résonateur SAW fonctionnant à 500 MHz [136].

Dans le cadre de nos travaux, le choix s'est porté sur une configuration de type ligne-à-retard. Ce choix se justifie principalement par les dimensions de la zone sensible du dispositif. En effet, il a été

présenté dans la section 2.3.1 que selon l'approximation de Sauerbey, la sensibilité est directement proportionnelle à la surface de la zone sensible. Dans cette section seront alors développées les étapes de conception de capteurs SAW à ondes de Rayleigh et à ondes de Love basés sur le principe des lignes à retard.

#### 2.4.1/ HYPOTHÈSE DE TRAVAIL

L'intérêt des capteurs SAW se situe au niveau de leur sensibilité aux perturbations de surface. Celles-ci peuvent se traduire par deux effets antagonistes. Le premier est appelé effet gravimétrique. Il se traduit par un ralentissement de l'onde de surface induisant une diminution de la fréquence de synchronisme ; la longueur d'onde  $\lambda$  restant constante. Le second est appelé effet élastique. Celui-ci se traduit par une augmentation de la vitesse de l'onde. Cet effet élastique a été exploité par Vanotti et al. pour la détection de l'hydrogène en phase gazeuse par des capteurs SAW à ondes de Rayleigh [137].

L'objectif de ce travail est la mesure de particules de matière PM10 et PM2,5 de pollution atmosphérique. Dans le premier chapitre de ce manuscrit a été mentionné le fait que ces particules sont, en grande majorité, des espèces carbonées (cf. section 1.2.2). Pour ce type de particules, l'effet attendu est purement gravimétrique. L'hypothèse envisagée sera donc la suivante : les particules adhèrent à la surface et forment une couche (cf. section 1.3.2). Celle-ci, composée de particules distinctes, ne sera pas parfaitement homogène mais le couplage entre la surface des capteurs et l'accumulation des particules va provoquer un effet gravimétrique induisant ainsi le ralentissement de l'onde de surface, mesurable dans notre cas, par un décalage négatif de la phase à fréquence constante.

#### 2.4.2/ CONCEPTION

##### 2.4.2.1/ CHOIX DU SUBSTRAT

Le choix du substrat piézoélectrique peut être fait en fonction de plusieurs paramètres :

- le coefficient de couplage  $k^2$ ,
- les vitesses de propagation des ondes de surface,
- la dépendance à la température déterminée par le CTF<sup>13</sup>.

Dans le tableau 2.2 sont résumées les caractéristiques principales de substrats piézoélectriques usuels.

Pour l'application visée dans ce projet et fort des connaissances acquises dans le laboratoire au cours de nombreuses années, nous avons choisi de travailler avec un substrat piézoélectrique en quartz. Celui-ci présente un faible coefficient de couplage électromécanique  $k^2$  par rapport à

---

13. Coefficient de Température de la Fréquence

14. variation parabolique

15. variation parabolique

Matériau	Coupe	$k^2$	CTF (ppm/°C)
Quartz	AT	0.14 %	- 0.035 <sup>14</sup>
Quartz	ST-X	0.16 %	- 0.035 <sup>15</sup>
LiNbO <sub>3</sub>	Y-Z	4.8 %	- 94
LiNbO <sub>3</sub>	Y+128°-X	5.5 %	- 74
LiNbO <sub>3</sub>	Y+64°-X	11.3 %	- 72
LiNbO <sub>3</sub>	Y+41°-X	17.2 %	- 52
Li <sub>2</sub> TaO <sub>3</sub>	Y+112°-X	0.64 %	- 94
Li <sub>2</sub> TaO <sub>3</sub>	Y+36°-X	7.25 %	- 94

TABLE 2.2 – Coefficients de couplages électromécaniques dans les matériaux usuels [98].

d'autres matériaux piézoélectriques tel que le niobate de lithium (cf. tableau 2.2). En revanche, il offre l'avantage de posséder un coefficient de température CTF quasi nul à la différence des autres matériaux piézoélectriques présentés dans le tableau 2.2. Le niobate de lithium (LiNbO<sub>3</sub>) aurait constitué également un choix intéressant car son coefficient de couplage est beaucoup plus élevé mais ce matériau est particulièrement difficile à manier du point de vue technologique du fait de ses propriétés pyroélectriques : un faible changement de température entraînant une variation de polarisation électrique et par conséquent une déformation. En outre, son CTF est compris entre -52 et -94 ppm/°C.

Ainsi, notre choix s'est porté sur le quartz de coupe AT (YXlt)/36° permettant de générer une onde de Love dont la vitesse de propagation est de l'ordre de 5100 m/s ou une onde de Rayleigh aux alentours de 3100 m/s. Malgré son coefficient de couplage électromécanique relativement faible  $k^2 \approx 0,14\%$ , cette coupe permet de compenser les effets de température aux environs de la température ambiante (25°C) car elle présente un point de symétrie autour de cette valeur offrant ainsi une meilleure stabilité thermique [138].

Pour la couche guidante des dispositifs à ondes de Love, une couche en silice présentant une vitesse de propagation de l'ordre de 3700 m/s et satisfaisant la condition de génération des ondes de Love, a été choisie. Par ailleurs, des couche de résine photosensible ont été réalisés et étudiés de manière à confronter la sensibilité de ces dispositifs aux particules par rapport à ceux présentant une couche en silice. Dans la suite de ce manuscrit seront présentées les expériences effectuées sur ces deux types de couches.

#### 2.4.2.2/ STRUCTURE DES TRANSDUCTEURS À PEIGNES INTERDIGITÉS

Au niveau des transducteurs à peignes interdigités (IDT), un mécanisme de réflexion interne dû à la présence des électrodes se produit. Les vitesses de propagation sur une surface métallisée ou

non étant différentes, ceci a pour conséquence de créer une onde réfléchie (cf. section 2.4). Si l'onde élastique va du transducteur d'entrée vers celui de sortie, l'onde réfléchie se propagera dans le sens inverse. Cette même onde sera aussi réfléchie en atteignant le transducteur d'entrée. Ce phénomène, appelé triple transit, est schématisé dans la figure 2.20.

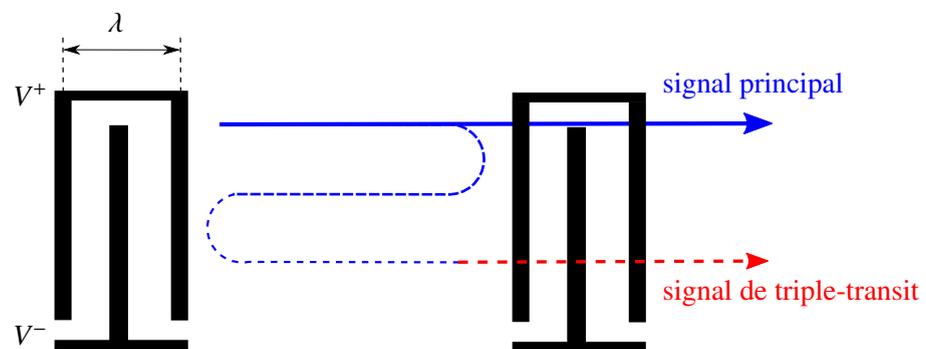


FIGURE 2.20 – Phénomène de triple transit [121].

Dans un transducteur IDT, chaque électrode réfléchit faiblement, mais la somme des ondes réfléchies sur chaque peigne du transducteur donne naissance à une onde dont l'amplitude est significative.

Afin de s'affranchir de ce phénomène, une structure à double doigts  $\lambda = 4p$  est utilisée. Dans cette configuration, les ondes réfléchies sont en opposition de phase ( $\pi$ ) et s'annulent les unes les autres (cf. figure 2.21(a)) alors que dans le cas des transducteurs "simple-doigt", les ondes réfléchies s'ajoutent en phase car  $\lambda = 2p$  (cf. figure 2.21(b)).

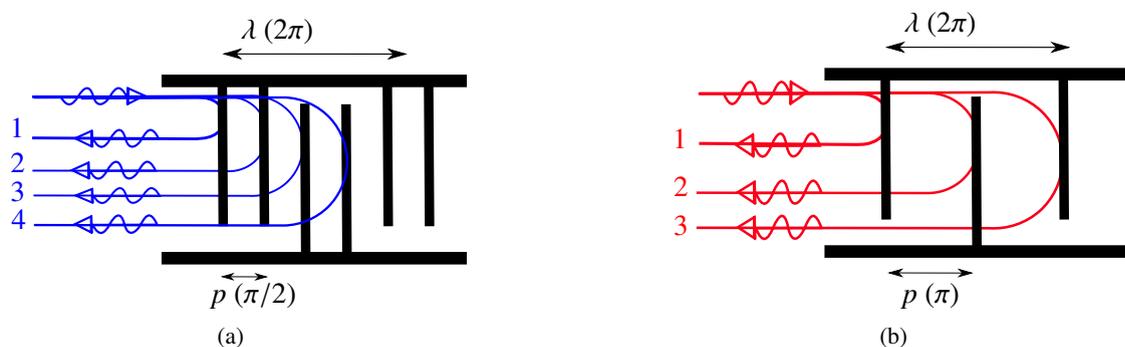


FIGURE 2.21 – Phénomène de réflexion dans les transducteurs IDT : (a) structure simple-doigt où l'addition des signaux réfléchis est en phase entraînant la formation d'une onde réfléchie d'amplitude non-nulle. (b) structure double-doigts où les ondes réfléchies sont en opposition de phase et donc s'annulent réciproquement

### 2.4.3/ FABRICATION DES DISPOSITIFS

La fabrication des dispositifs SAW se fait en 3 phases. Les wafers sont d'abord fabriqués en salle blanche, ensuite les puces sont découpées individuellement pour enfin être montées sur circuit imprimé.

#### 2.4.3.1/ ÉTAPES TECHNOLOGIQUES DE LA FABRICATION DE WAFERS

La fabrication des dispositifs a été effectuée grâce aux moyens disponibles au sein de la centrale technologique MIMENTO<sup>16</sup>. Les étapes du procédé photolithographique utilisées pour la réalisation des lignes à retard, représentées sur la figure 2.22, sont les suivantes :

- 1- La première étape consiste à nettoyer le substrat afin de limiter les défauts liés aux impuretés présentes sur le wafer avant l'enduction d'une résine photosensible. Ce nettoyage est effectué par plasma O<sub>2</sub>, des solvants (acétone, éthanol,..) ou attaque acide.
- 2- La deuxième étape consiste à enduire le substrat avec une résine inversible, représentée en jaune, nécessaire à l'obtention de flancs de résine inversés pour le lift-off. Cette opération est réalisée par spin-coating ou centrifugation suivie d'un recuit permettant l'évaporation des solvants présents dans la résine .
- 3- La résine est ensuite exposée aux rayons ultra violets à travers un masque dont les zones opaques correspondent aux motifs métallisés sur le substrat en fin de procédé.
- 4- A ce stade, la résine exposée est à l'état d'acide carboxylique (représentée en bleu) car les agents photo-actifs ont été activés.
- 5- La cinquième étape est celle du recuit d'inversion entraînant la réticulation de la résine insolée (représentée en rouge) qui devient alors quasiment insoluble dans le développeur. Ce dernier étant composée d'une solution basique.
- 6- Une insolation pleine plaque est ensuite réalisée sans masque sur la totalité du wafer. Cette étape permet d'obtenir une résine sous forme d'acide carboxylique aux emplacements des motifs non insolés lors de l'étape 3.
- 7- À présent la résine nouvellement insolée se trouve sous forme acide sous les motifs opaques du masque et sous forme réticulée sur le reste du wafer.
- 8- Le wafer est ensuite trempé dans le développeur entraînant ainsi la solubilisation des zones de résine à l'état d'acide carboxylique.
- 9- L'aluminium est ensuite déposé par évaporation assistée par canon à électrons. Cette méthode directionnelle permet notamment d'éviter la couverture par le métal des flancs de résine.
- 10- Pour finir, la résine est éliminée via un bain d'acétone associé à des ultra-sons.

Les mêmes masques ont été utilisés pour la réalisation des lignes à retard permettant la propagation des ondes de Rayleigh et de Love. Il est à préciser que pour les dispositifs à ondes de Love, l'orientation des IDTs sur le substrat présente un angle de 90° de manière à permettre l'excitation du mode transverse. La couche guidante de silice nécessaire à la propagation des ondes de Love

---

16. Microfabrication pour la MEcanique, les Nanosciences, la Thermique et l'Optique

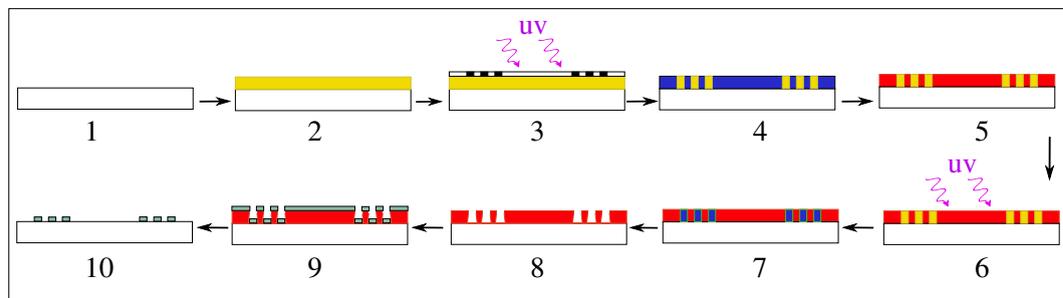


FIGURE 2.22 – Flow Chart de fabrication des lignes à retard SAW

est déposée par un procédé PECVD<sup>17</sup>.

#### 2.4.3.2/ DÉCOUPE DES PUCES

Après la fabrication du wafer, une découpe des puces est nécessaire pour permettre leur séparation. Il en résulte la formation d'une interface substrat/air constituant une rupture d'impédance acoustique abrupte, source de réflexions parasites enclines à perturber la réponse du dispositif (cf. section 2.4). La mesure se faisant avec un suivi de la phase à fréquence constante (cf. section 2.3.2.2), il est capital d'avoir la meilleure linéarité possible dans la relation phase/fréquence. Or ces réflexions compromettent cette linéarité, introduisant alors une erreur dans la mesure de phase à fréquence constante. Pour cela, il est nécessaire de minimiser ces réflexions soit en ajoutant un absorbant sur les bord des dispositifs soit en effectuant des coupes inclinées (cf. figure 2.23).

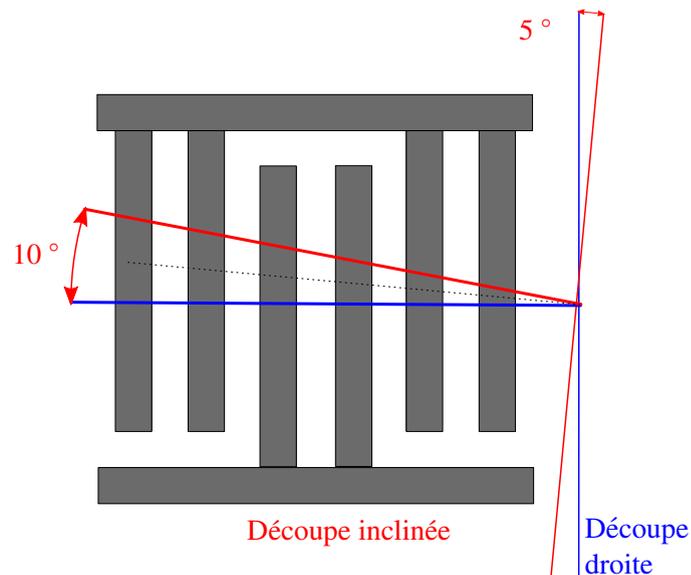


FIGURE 2.23 – Représentation de la découpe inclinée des puces permettant la minimisation des réflexions parasites.

Avec un angle de découpe de  $5^\circ$ , le chemin de l'onde réfléchi se trouve prolongé avec un décalage

17. Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition

de phase de 0,097 radians à chaque passage d'une paire de double doigts [111]. Par conséquent, le signal réfléchi ne s'additionne pas en phase avec celui incident. Ceci est démontré de manière pratique en étudiant l'amplitude du paramètre de transmission  $S_{21}$  du dispositif à l'analyseur de réseau. Sur la figure 2.24, il est possible d'observer que les réflexions sont clairement réduites dans le spectre d'amplitude entre une découpe normale à la direction de propagation et une découpe inclinée.

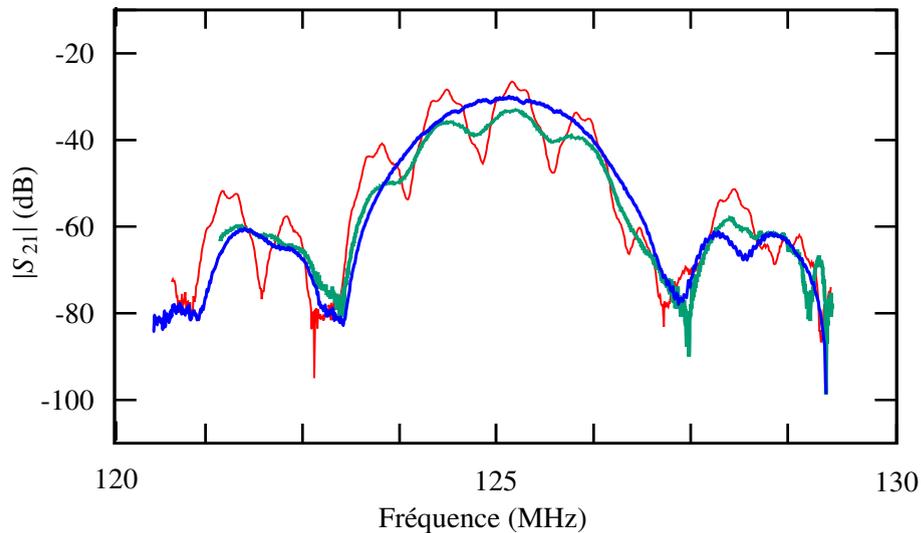


FIGURE 2.24 – Amplitude du paramètre de transmission pour des puces découpées de façon droite sans absorbant (en rouge), avec absorbant (en vert) et découpée de façon inclinée (en bleu).

#### 2.4.4/ MONTAGE DES PUCES SUR CIRCUIT IMPRIMÉ

Après avoir été découpées et testées individuellement au testeur sous pointes, les puces sont montées sur PCB<sup>18</sup> au moyen de connexions de type micro fils en or (technique dite de "wire bonding"). Ensuite, des connecteurs de type SMA<sup>19</sup> d'impédance 50  $\Omega$  sont mis en place permettant la connexion des dispositifs SAW avec les câbles coaxiaux nécessaires à la transmission des signaux radio fréquence.

### 2.5/ RÉPONSE AUX PARTICULES

#### 2.5.1/ EXPÉRIENCES DE VALIDATION DE LA DÉTECTION

Des expériences de validation de sensibilité des capteurs vis-à-vis des particules fines ont été effectuées en collaboration avec le laboratoire Chimie-Environnement de Marseille (LCE<sup>20</sup>). Le but de ces expériences a été, d'une part la caractérisation de la sensibilité des capteurs SAW en présence des particules, et d'autre part, de déterminer la configuration présentant la plus grande

18. Printed Circuit Board

19. SubMiniature version A

20. Laboratoire Chimie-Environnement

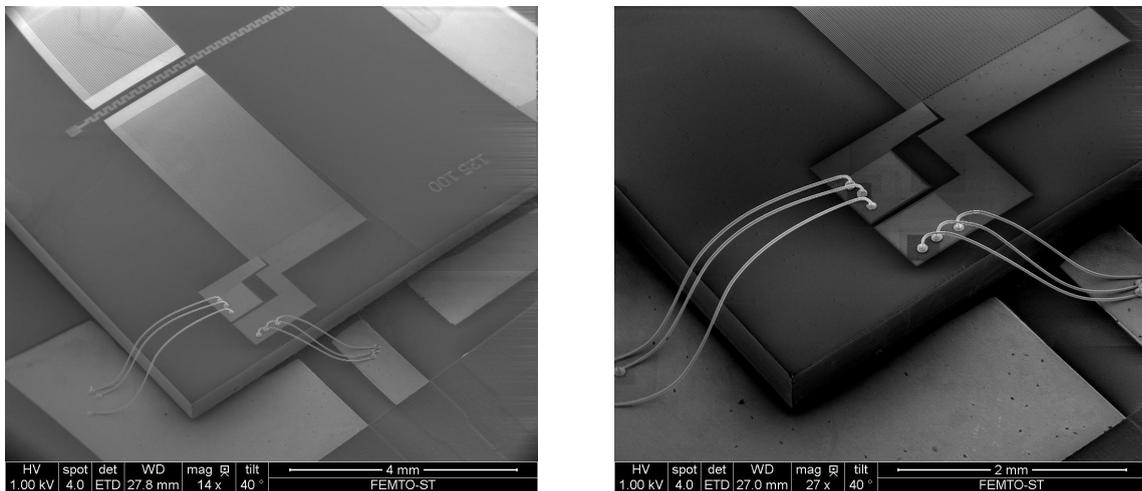


FIGURE 2.25 – Image par microscopie électronique à balayage des micro-soudures reliant le dispositif SAW au circuit imprimé.

sensibilité parmi trois dispositifs différents : un dispositif à ondes de Rayleigh et deux dispositifs à ondes de Love ; l'un recouvert d'une couche guidante en résine photosensible S1813 et l'autre d'une couche de silice.

#### 2.5.1.1/ PRÉSENTATION DU BANC



FIGURE 2.26 – Chambre VCE 100 disponible au LCE (Marseille) dans laquelle les capteurs SAW ont été testés.

Les trois capteurs à ondes élastiques de surface ont été positionnés dans une chambre de type Mikron VCE 1000 contrôlée en température et en humidité (cf. figure 2.26).

Les capteurs sont interrogés simultanément en utilisant une carte électronique dédiée et développée en collaboration avec FEMTO-ST par David Rabus, ingénieur de recherche dans l'entreprise SEN-SeOR. Cette méthode d'interrogation en boucle ouverte permet une précision dans la mesure de phase de l'ordre de la dizaine de millidegrés [139].

Les particules générées et injectées dans la chambre sont issues de fumée de bougie. La concen-

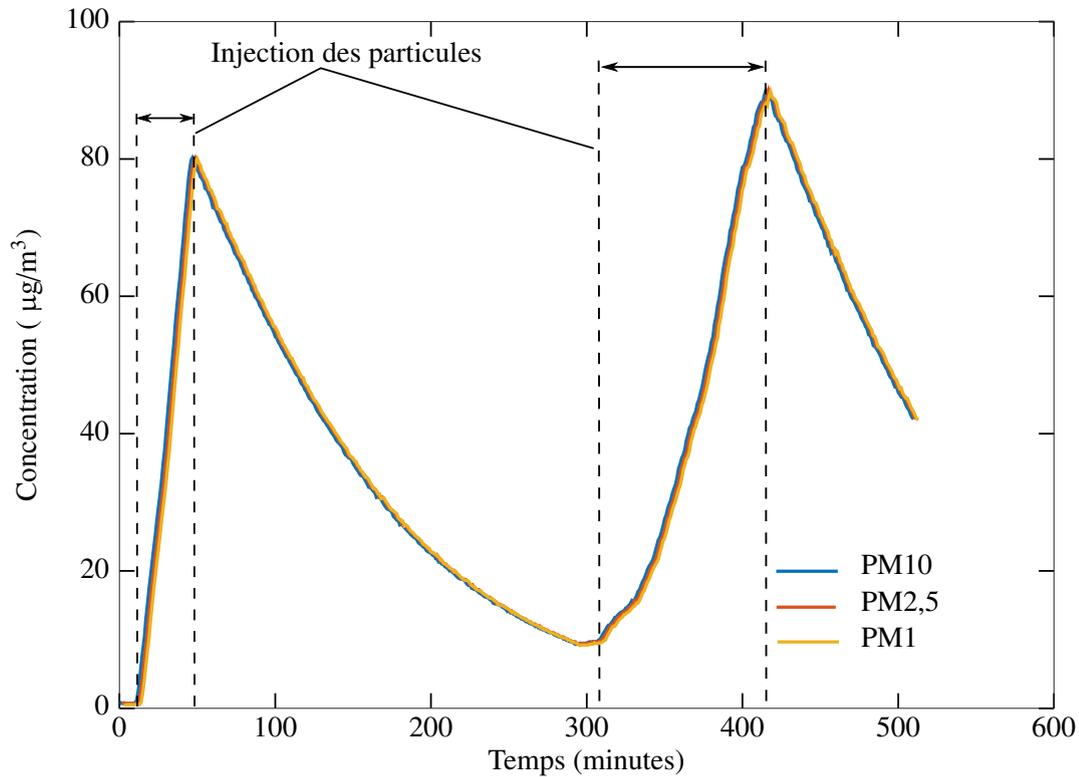


FIGURE 2.27 – Évolution de la concentration en particules dans l'enceinte VCE 1000 lors de la génération de particules issues de fumée de bougie mesurée par l'OPC.

tration des particules à l'intérieur de l'enceinte est mesurée à l'aide d'un compteur optique (OPC). Cependant, la quantité de particules générées n'est pas maîtrisée ; la concentration monte très rapidement au moment de la génération et redescend aussitôt que celle-ci est arrêtée (cf. figure 2.27). En étudiant les concentrations de particules mesurées à l'aide de l'OPC, les courbes PM10, PM2,5 et PM1 sont confondues ; indiquant l'absence de particules de diamètre supérieur à 1 µm. Il est alors possible de conclure que les particules générées par la fumée de bougie sont exclusivement des PM1.

### 2.5.1.2/ RÉSULTATS ET INTERPRÉTATION

Sur la figure 2.28 sont représentées les réponses en phase des capteurs SAW placés à l'intérieur de l'enceinte. La courbe verte représente la phase du capteur à ondes de Rayleigh. L'amplitude de réponse de ce type de dispositif étant inférieure au bruit de phase mesuré, nous avons considéré ce capteur inadapté à la mesure visée. La courbe bleue représente, quant à elle, la réponse du capteur à ondes de Love recouvert d'une couche guidante en résine. Celui-ci répond avec une diminution de sa phase caractéristique d'un effet de masse. Enfin, la courbe rouge représente la phase du cap-

teur à ondes de Love recouvert d'une couche guidante en silice. Ce dernier donne une réponse quatre fois plus importante que celui avec un guide en résine. En outre, le temps de réponse, de l'ordre d'une vingtaine de secondes, est suffisant pour les objectifs visés du projet P' AIR, celui-ci nécessitant une mesure tous les quarts d'heure. En effet, dès l'injection de faible quantité de particules, il est possible d'observer la variation de phase associée. Dès l'arrêt de l'injection des particules, réalisée quand la concentration est proche de  $90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , la phase des capteurs à ondes de Love remonte ce qui signifie que les particules présentes en surface s'en détachent progressivement. Lors du deuxième cycle d'injection, le même schéma d'adsorption/désorption caractérisé par une descente/montée de la phase des capteurs à ondes de Love est observé.

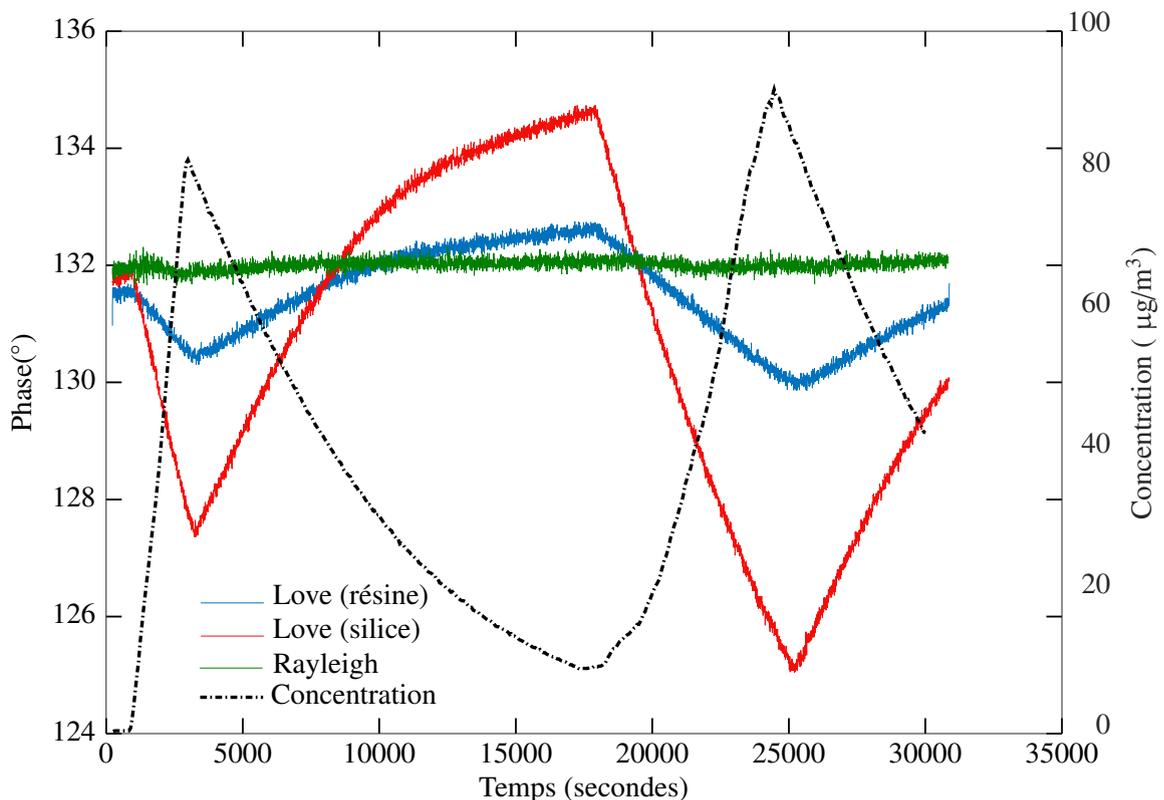


FIGURE 2.28 – Évolution de la phase des capteurs SAW en présence de particules fines dans l'enceinte VCE 1000.

De ces premières expériences, les conclusions suivantes ont pu être tirées. Tout d'abord, comme nous l'avons supposé dans l'hypothèse de départ, les capteurs SAW sont capables de mesurer les particules fines par effet gravimétrique. En outre, les capteurs SAW à ondes de Love avec couche guidante en silice ont montré une plus grande sensibilité gravimétrique que les autres capteurs testés. Ceux-ci ont été capables de détecter les particules à des concentrations comprises entre 0 et  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  correspondant à celles rencontrées en pollution atmosphérique. Ces capteurs sont donc adaptés à la détection des particules fines et ont été retenus pour la suite des travaux.

### 2.5.2/ INFLUENCE DE L'ÉPAISSEUR DU GUIDE D'ONDE EN SILICE SUR LA SENSIBILITÉ

Ces premières expériences ont permis de valider l'utilisation de la silice comme couche guidante des dispositifs à ondes de Love. La couche de silice utilisée présentait une épaisseur de  $1,8 \mu\text{m}$ . L'homogénéité du dépôt, effectué par évaporation, est difficile à obtenir pour de telles épaisseurs. Dans le but de simplifier le procédé et surtout de le rendre répétable pour une éventuelle commercialisation du produit final, une épaisseur plus faible, de l'ordre de  $0,8 \mu\text{m}$ , est préférable. Cependant, la sensibilité des dispositifs à ondes de Love dépend fortement de l'épaisseur du guide. Pour étudier cette influence, des simulations sont effectuées en utilisant les outils de calculs développés au sein même de l'équipe CoSyMA au département Temps-Fréquence de l'institut FEMTO-ST [140, 141]. L'atout majeur de ces outils numériques est la possibilité d'obtenir un accord simulation/expérience pour les dispositifs à ondes de surface. Une description détaillée du fonctionnement de ces simulateurs est disponible dans la thèse de doctorat d'Alexandre Reinhard [142]. Le modèle de simulation consiste en un empilement de couches composé d'un substrat semi infini de quartz de coupe AT, d'une couche guidante en silice et d'une troisième couche d'or utilisée pour reproduire l'effet de masse. Deux épaisseurs de silice seront simulées :  $800 \text{ nm}$  et  $1,8 \mu\text{m}$ . Il est alors possible d'estimer la variation de vitesse de phase des ondes élastiques en fonction de l'épaisseur de la couche d'or et d'en déduire la sensibilité gravimétrique pour les deux épaisseurs de guide.

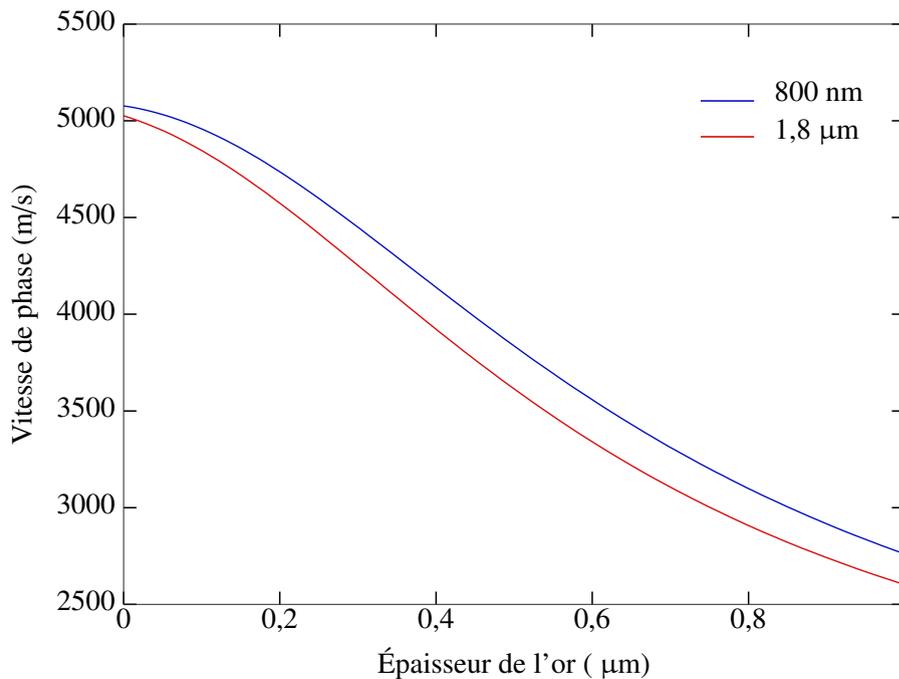


FIGURE 2.29 – Évolution de la vitesse de phase d'une onde de Love dans un guide de silice de  $800 \text{ nm}$  d'épaisseur (en bleu) et  $1,8 \mu\text{m}$  d'épaisseur (en rouge).

Sur la figure 2.29 sont représentées les vitesses de propagation des ondes de Love dans des guides de  $1,8 \mu\text{m}$  et  $800 \text{ nm}$  d'épaisseur en fonction de l'épaisseur de la couche d'or additionnelle. À partir de ces données, il est alors possible de calculer la sensibilité gravimétrique théorique des dispositifs ainsi que l'évolution de celle-ci en fonction de la masse ajoutée (cf. figure 2.30). Il est

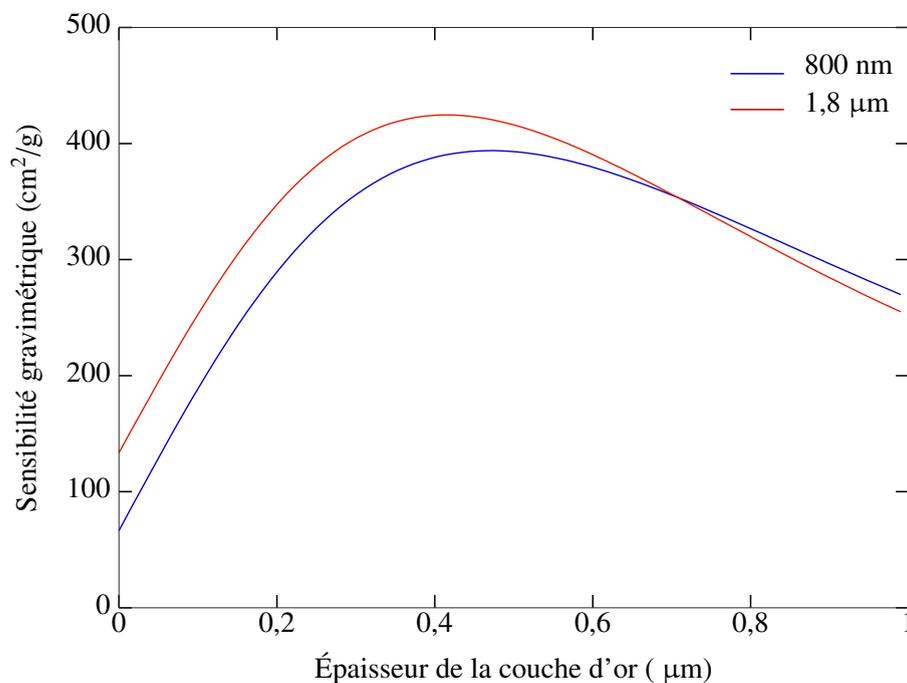


FIGURE 2.30 – Évolution de la sensibilité gravimétrique d'un dispositif à onde de Love avec un guide de silice de 800 nm d'épaisseur (en bleu) et 1,8 µm d'épaisseur (en rouge).

possible de constater que ces deux courbes présentent des valeurs de sensibilité proches. Dans le but de vérifier ces résultats expérimentalement, une comparaison de la sensibilité de deux capteurs à ondes de Love recouverts respectivement de 1,8 µm et 800 nm de silice a été réalisée en présence de particules issues de fumée de bougie. La figure 2.31 montre l'évolution de la réponse en phase de ces deux capteurs.

La baisse de sensibilité constatée entre ces deux réponses n'est effectivement pas significative. Pour la suite de ce projet, il a donc été décidé de poursuivre les investigations en utilisant des capteurs SAW recouvert d'une couche guidante de l'ordre de 800 nm permettant une meilleure homogénéité de dépôt et une répétabilité dans la fabrication.

## 2.6/ CONCLUSION

Dans ce deuxième chapitre, nous avons présenté les caractéristiques des capteurs à ondes élastiques de surface dédiés à la détection de particules. Pour cela, nous avons introduit les principes généraux de la propagation des ondes élastiques dans les solides et en particulier dans les cristaux piézoélectriques. Nous avons montré l'intérêt de choisir la technologie SAW pour notre application, principalement du fait de leur sensibilité gravimétrique. Les différentes étapes de conception de ces capteurs SAW ont été détaillées, notamment concernant le choix des matériaux, de la coupe

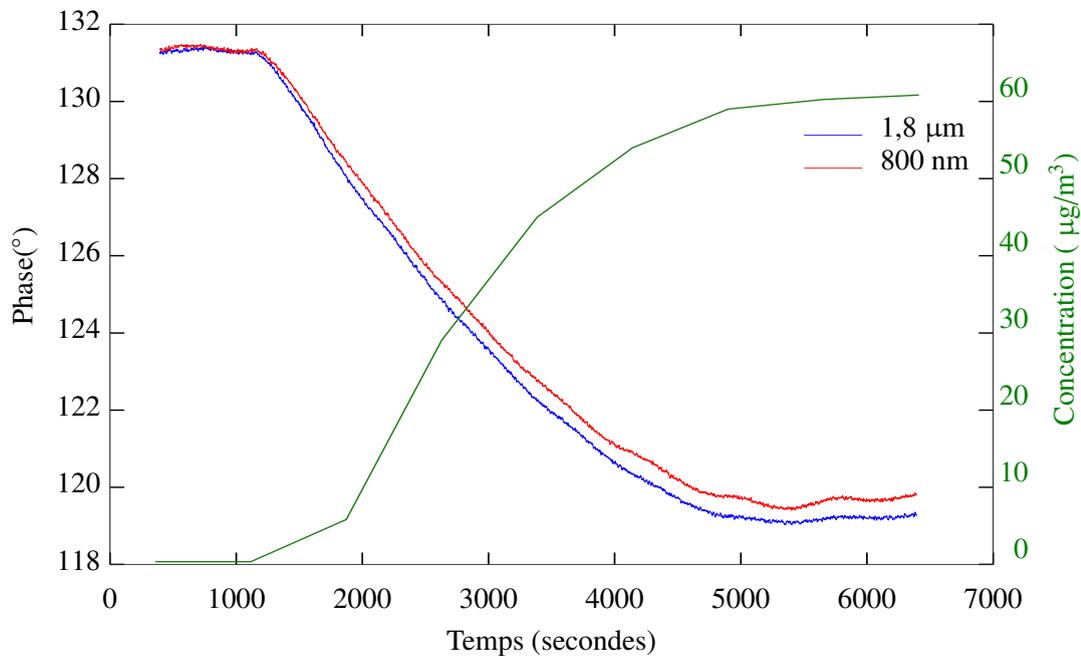


FIGURE 2.31 – Evolution des phases de capteurs SAW à ondes de Love recouvert de 1,8 µm (bleu) et 800 nm (rouge) de silice avec la concentration particulaire présente dans l'enceinte.

crystalline ainsi que de la structure des peignes interdigités.

La sensibilité aux particules fines de ce type de capteurs a été validée expérimentalement. Les capteurs à ondes de Love recouvert d'une couche guidante en silice ont été identifiés comme les plus prometteurs. Pour des raisons technologiques, il a été nécessaire d'étudier l'influence de l'épaisseur de silice et de la réduire pour faciliter sa fabrication.

Pour réaliser la discrimination des particules fines selon leur taille, un système de séparation des particules est nécessaire en amont des capteurs. Le choix, la conception puis l'intégration des capteurs SAW dans un tel système fera l'objet du chapitre suivant.

## CONCEPTION D'UN SYSTÈME DE SÉPARATION DE PARTICULES PM<sub>2,5</sub> ET PM<sub>10</sub>

Dans le chapitre précédent, les étapes de développement des capteurs SAW dédiés à la mesure de particules ont été présentées. Le design choisi est celui des dispositifs à ondes de Love recouvert d'une couche guidante en silice. La sensibilité de ceux-ci aux particules fines a été démontrée expérimentalement. Ces capteurs, bien que sensibles, sont incapables de discriminer les particules selon leur taille. Or, dans le cadre du projet P' AIR, l'objectif est de concevoir un système de mesure et de différenciation des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub>. Par conséquent, le système doit être en mesure de distinguer les particules selon leur taille. Un système de séparation de particules doit donc être placé en amont de ces capteurs. Ce troisième chapitre sera dédié à l'élaboration d'un tel système et présentera les différents éléments ayant permis sa conception.

Tout d'abord, seront présentées les caractéristiques des systèmes de filtration et classificateurs inertiels existants. Au vu des avantages et inconvénients de chacun, le système le plus fonctionnel sera choisi. Le dimensionnement du système de séparation sera détaillé d'abord en se basant sur des équations théoriques puis à travers des simulations numériques utilisant la méthode des éléments finis. L'intégration des capteurs au sein du système sera également présentée. Celle-ci représentant la partie la plus innovante de ces travaux. Un prototype, fonctionnant à un débit de 3 Lpm, a été fabriqué au cours de cette thèse.

### 3.1/ CHOIX D'UN SYSTÈME DE SÉPARATION

Le système de séparation choisi devra permettre une différenciation en fonction du diamètre aérodynamique (cf. section 1.4). De ce fait, le principe des classificateurs inertiels semble être le choix le plus approprié à la réalisation de la séparation en comparaison avec les filtres à fibres ou à membranes (cf. section 1.5.2). Dans cette catégorie, les cyclones et les impacteurs en cascade sont les systèmes les plus classiquement utilisés.

L'objectif étant de séparer les particules de diamètre inférieur à 10  $\mu\text{m}$  et 2,5  $\mu\text{m}$ , le système doit permettre la séparation simultanée de ces deux gammes de tailles. Or, il a été mentionné précédemment que la séparation par cyclone n'offrait qu'un seul diamètre de coupure par débit de prélèvement défini. Cela signifie que l'utilisation des cyclones pour l'application visée implique

soit de mettre en place deux cyclones de géométrie différentes en cascade avec une seule pompe de prélèvement, soit de placer deux cyclones en parallèle ainsi que deux pompes fonctionnant à des débits différents. Dans les deux cas, le système obtenu ne pourrait pas correspondre aux cahier des charges en termes de dimensions et de consommation.

Les impacteurs en cascade de leur côté, grâce à leur système à étage permettent d'obtenir plusieurs diamètres de coupure dans un seul et même système et avec un seul débit de prélèvement (cf. section 1.5.2). Notre choix s'est donc porté sur cette configuration pour la séparation des PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub>. Certains impacteurs en cascade commerciaux, tel que le Dekati® PM<sub>10</sub> Impactor présenté dans le chapitre 1, présentaient les caractéristiques adéquates aux objectifs du projet mais leur prix d'achat proche de 4000 € les rend inadaptés à la réalisation de ce dispositif. Par conséquent, il a été décidé de concevoir un impacteur dédié spécifiquement à l'application visée.

### 3.2/ THÉORIE DES IMPACTEURS

Après l'étude originale de May en 1945 où le principe des impacteurs a été initialement présenté [143], c'est dans le début des années 1950 que les premières études théoriques sur les impacteurs en cascade ont été développées [144, 145]. Depuis lors, ces instruments ont été largement utilisés et étudiés. Pour citer quelques travaux récents, Misra *et al.* ont développé un impacteur à débit élevé et à faible pression [146], Kwon *et al.* de leur côté en ont conçu un à cinq étages pour la mesure de la pollution [147] et Demokritou *et al.* un impacteur à huit étages également pour la caractérisation des aérosols atmosphériques [148].

Le principe global de la séparation des particules d'un aérosol par impaction est expliqué dans la section 1.5.2. Il s'agit de déterminer la taille des particules pour laquelle les forces inertielles deviennent dominantes par rapport à la force de traînée des particules dans le flux d'air due à la friction. Au delà de cette taille, donnée par le diamètre de coupure  $d_{50}$ , les particules quittent les lignes de champs du flux d'air et impactent sur la plaque de collection. Ce mécanisme repose sur le concept du nombre de Stokes.

Dans la section 1.3.3.5, a été introduite la notion de vitesse terminale de chute définie par :

$$V_{ts} = \frac{\rho_p d_p^2 C_c}{18\eta} \times g,$$

où  $C_c$  est le facteur de Cunningham et  $\eta$  la viscosité de l'air. À partir de cette formule, le temps de relaxation de la particule  $\tau$  est :

$$\tau = \frac{\rho_p d_p^2 C_c}{18\eta}$$

Le nombre de Stokes sera défini, dans l'équation 3.1, comme le ratio :

$$S_{tk} = \frac{S}{D}, \quad (3.1)$$

où  $S = V_0 \times \tau$  est le temps d'arrêt d'une particule ayant une vitesse initiale  $V_0$  et  $D$  étant la dimension caractéristique de la surface de collision.

Le nombre de Stokes est utilisé comme indicateur de l'importance des forces inertielles pour une particule dans un aérosol. Nous distinguons deux cas de figure :

- Si le nombre de Stokes est très petit ( $S_{tk} \ll 1$ ). Les effets inertiels sont négligeables.
- Si, au contraire, le nombre de Stokes se rapproche de 1, les effets inertiels deviennent plus importants voire dominants.

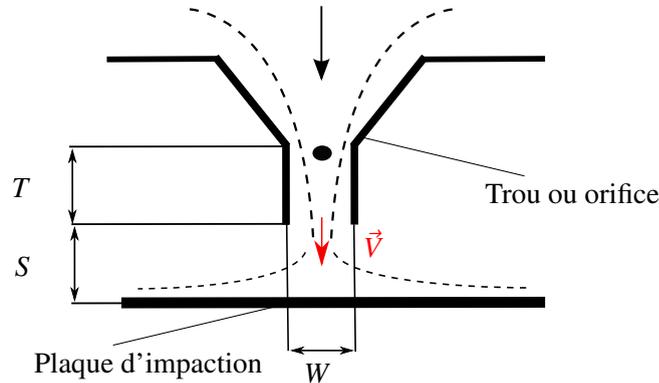


FIGURE 3.1 – Schéma du phénomène d'impaction sur un étage d'impacteur en cascade.

Dans un impacteur en cascade, chaque étage est composé de deux éléments caractéristiques : les trous et la plaque d'impaction (cf. figure 3.1). Tout d'abord, les trous sont positionnés dans la partie supérieure de l'étage, ils servent à accélérer le flux d'air. Dans la partie inférieure, se trouve la plaque d'impaction, ou dite de collection, qui a pour rôle de recevoir les particules impactant sur sa surface.

Dans un étage d'impaction, la distance caractéristique  $D$  de l'équation 3.1 est définie par le diamètre des trous, noté  $W$ . Le nombre de Stokes, sera alors dans ce cas défini par la formule 3.2 :

$$S_{tk} = \frac{\rho_p d_p^2 C_c V}{9\eta W}, \quad (3.2)$$

où  $V$  est la vitesse moyenne du flux à la sortie de l'orifice.

Un impacteur en cascade est caractérisé par ses courbes d'efficacité (cf. figure 3.2 (a)). Celles-ci relèvent l'efficacité de la filtration à chaque étage ainsi que les diamètres de coupure  $d_{50}$  ; ces derniers correspondant à une efficacité de collection de 50%. En effet, comme expliqué dans le chapitre 1, la séparation est d'autant plus efficace que la caractéristique est abrupte. Idéalement, la courbe devrait être parfaitement verticale.

Les étages d'impacteurs présentant des géométries similaires, c'est à dire ayant des orifices de forme identique sur tous les étages, ont tendance à présenter des courbes d'efficacité confondues si celles-ci sont tracées en fonction du nombre de Stokes (cf. figure 3.2 (b)). De ce fait, les diamètres de coupure  $d_{50}$  de ces étages correspondent tous à un seul nombre de Stokes appelé nombre de Stokes critique ou  $S_{tk50}$ . Dans le cas d'orifices arrondis, le nombre de Stokes critique sera  $S_{tk50} \approx 0.24$  [56].

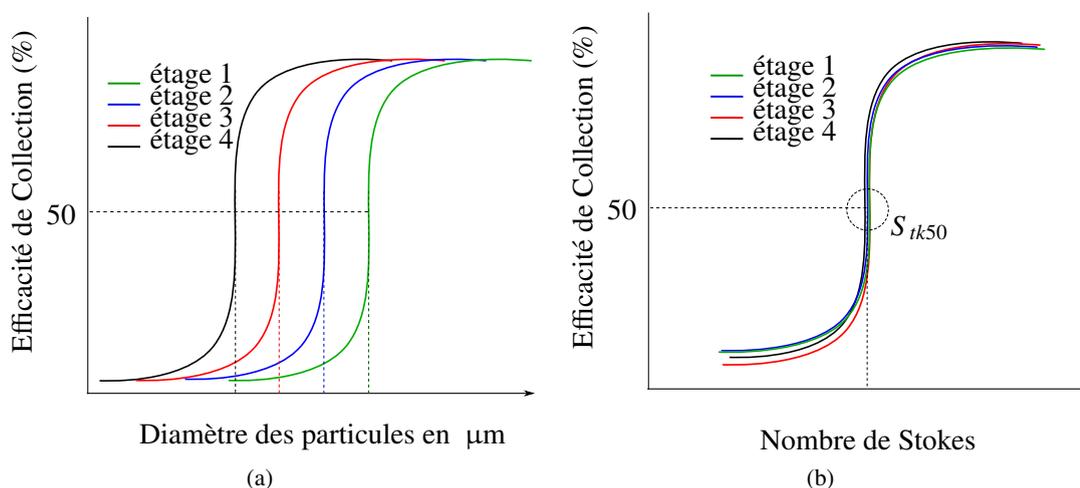


FIGURE 3.2 – Représentation de l'efficacité de collection des étages d'impaction : (a) en fonction du diamètre des particules, (b) en fonction du nombre de Stokes.

À partir de l'équation 3.2, le nombre de Stokes critique  $S_{tk50}$  peut être exprimé en fonction du diamètre de coupure  $d_{50}$ .

$$S_{tk50} = \frac{\rho_p d_{50}^2 C_c V}{9\eta W} \quad (3.3)$$

Les trous étant de forme arrondie, la vitesse moyenne de flux dans les orifices peut être exprimée par :

$$V = \frac{Q}{\pi W^2/4}, \quad (3.4)$$

où  $Q$  est le débit d'air. En remplaçant l'expression de  $V$  dans l'équation 3.3, le diamètre des trous  $W$  en fonction du diamètre de coupure  $d_{50}$ , du nombre de Stokes critique  $S_{tk50}$  et du débit  $Q$  devient :

$$W = \left( \frac{4 \rho_p d_{50}^2 C_c Q}{9 \pi \eta S_{tk50}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (3.5)$$

Ainsi, pour un étage comportant de multiple trous de même diamètre, nous avons :

$$W = \left( \frac{4 \rho_p d_{50}^2 C_c Q}{9 n \pi \eta S_{tk50}} \right)^{\frac{1}{3}}, \quad (3.6)$$

$n$  étant le nombre de trous.

Il est à noter que la théorie des impacteurs décrite dans ces équations ne prend aucunement en considération les éventuels effets indésirables tels que les rebonds sur la plaque de collection et/ou le ré-entraînement des particules. En effet, dans cette logique, toutes les particules impactant sur les plaques de collection y restent collées. Dans le chapitre suivant, seront présentées les limites d'une telle hypothèse dans le cas pratique.

### 3.3/ CONCEPTION DU SYSTÈME D'IMPACTION

Pour la réalisation de l'impacteur P'AIR, trois étages permettant la séparation de trois diamètres de coupure différents sont nécessaires. La figure 3.3 présente le schéma du système attendu. Il comprend :

- Un premier étage caractérisé par un diamètre de coupure  $d_{50}=10\ \mu\text{m}$ . Cet étage sert à éliminer toutes les particules dont le diamètre est supérieur à  $10\ \mu\text{m}$ .
- Un deuxième étage, appelé abusivement "PM10", présentant un diamètre de coupure  $d_{50}$  à  $2,5\ \mu\text{m}$ . Son rôle est de permettre la mesure des particules grossières comprises entre  $2,5\ \mu\text{m}$  et  $10\ \mu\text{m}$ . Un capteur SAW placé sur la plaque de collection permettra la mesure des particules présentes dessus.
- Un troisième et dernier étage servant à mesurer les particules fines dont le diamètre est compris entre  $0,3$  et  $2,5\ \mu\text{m}$ . Le diamètre de coupure choisi a donc pour valeur  $0,3\ \mu\text{m}$ . Un second capteur SAW, identique à celui placé au niveau de l'étage précédent, sera positionné sur cette autre plaque de collection.

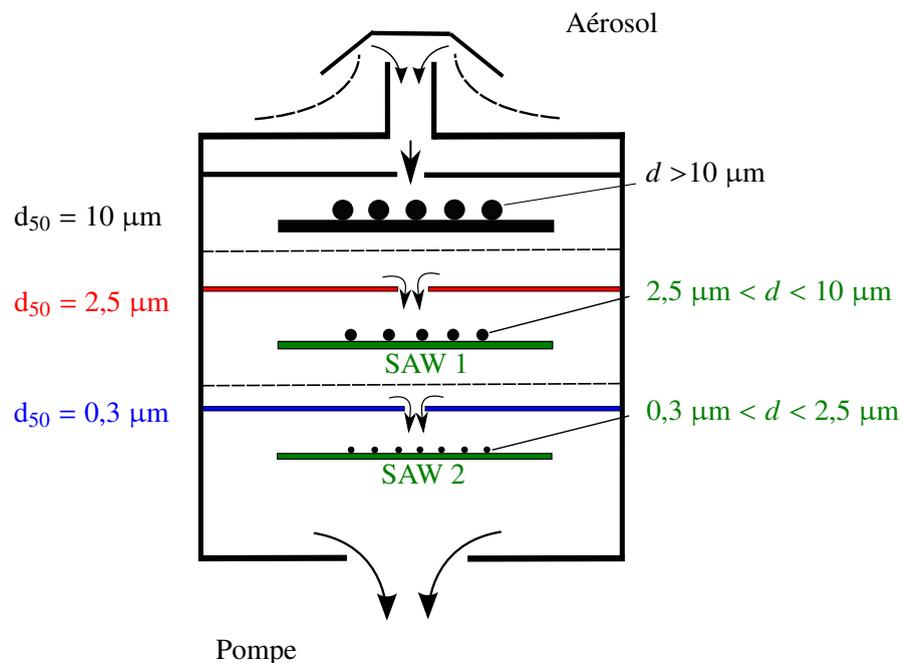


FIGURE 3.3 – Représentation du système P'AIR comprenant les étages d'impaction et les capteurs SAW.

La conception d'un tel système passe par plusieurs étapes. Dans un premier temps, seront présentées les différentes étapes de dimensionnement des trois étages d'impaction. Ensuite, la conception des plaques d'impaction capables d'intégrer les capteurs SAW sera détaillée ; celles-ci permettant de réaliser des mesures de particules en temps réel.

### 3.3.1/ DIMENSIONNEMENT

Dans un souci de compacité et de coût, le débit choisi du système est de 3 Lpm. Dans la littérature ainsi que dans le commerce, la majorité des impacteurs fonctionnent à des débits plus élevés, or dans le cadre du projet P' AIR, un effort particulier est effectué pour minimiser la consommation en énergie.

Dans la phase de dimensionnement, plusieurs paramètres ont été étudiés notamment :

- la forme des orifices

Le choix s'est porté sur des orifices de forme arrondie car plus facilement usinables. En outre, la partie supérieure de ceux-ci sera de forme conique, facilitant ainsi le passage des particules et limitant leur adhésion à l'entrée des orifices.

- la profondeur des trous

Cette profondeur est caractérisée par le ratio  $T/W$  (cf. figure 3.1). Si ce ratio est trop petit, le temps nécessaire à l'établissement de la vitesse désirée peut ne pas être atteint. La valeur minimale donnée par Marple et Willeke est  $T/W = 1$  [149]. Toutefois, il a été montré que cette valeur minimale reste relativement peu critique dans le cas d'orifices de forme arrondie ayant une entrée conique.

- la distance plaque / orifice

L'influence de la distance entre les trous et la plaque d'impaction, caractérisée par le ratio  $S/W$  (cf. figure 3.1), a fait l'objet d'une étude de la part de V. A. Marple dans un article du Journal of Aerosol Science [150]. Il y fait état que pour une valeur  $S/W > 0,5$ , la distance  $S$  a peu d'influence sur l'efficacité de collection et sur les diamètre de coupure. En outre, Marple et Willeke proposent comme valeur de référence  $S/W = 1$  [149].

Nous avons montré précédemment que le nombre de Stokes critique pouvait s'exprimer en fonction du diamètre  $W$  et du nombre de trous  $n$  ainsi que du diamètre de coupure  $d_{50}$  sous la forme :

$$St_{tk50} = \frac{4 \rho_p d_{50}^2 C_c Q}{9 \pi \eta n W^3} \quad (3.7)$$

Pour un diamètre de coupure désiré, il apparaît que l'équation 3.7 contient deux inconnues :  $W$  et  $n$ . En d'autres termes, il existe un certain nombre de couples  $(W, n)$  satisfaisant cette équation. Pour éliminer une de ces variables, il suffit d'introduire le nombre de Reynolds dans l'équation. Pour rappel, celui-ci correspond au ratio des forces inertielles sur celles de viscosité du flux :

$$Re = \frac{\rho V W}{\eta} = \frac{4 \rho Q}{\pi n \eta W}, \quad (3.8)$$

où  $\rho$  est la masse volumique de l'air.

En remplaçant  $W = \frac{4\rho Q}{\pi n \eta Re}$  dans l'équation 3.7, le nombre de Stokes critique en fonction du nombre de Reynolds et le nombre de trous devient :

$$S_{tk50} = \frac{4 \rho_p d_{50}^2 C_c Q}{9 \pi \eta n (4\rho Q / \pi n \eta Re)^3} \quad (3.9)$$

pour obtenir au final :

$$S_{tk50} = \frac{\rho_p d_{50}^2 C_c \pi^2 n^2 \eta^2 Re^3}{9 \times 16 \rho^3 Q^2} \quad (3.10)$$

Ainsi, à partir de ces équations et en imposant le nombre de Reynolds  $Re$ , il est possible de déterminer un couple  $(W, n)$  correspondant.

L'influence du nombre de Reynolds sur l'efficacité des impacteurs a fait l'objet de plusieurs études. Willeke et Marple préconisent un  $Re$  compris entre 500 et 10000 [149] alors que S.V. Hering donne une valeur minimale de  $Re = 200$  [56]. Bien que, selon Willeke et Marple, le nombre de Reynolds puisse aller jusqu'à 10000, nous nous limiterons dans ce design à un nombre de Reynolds compris entre 200 et 2500 de manière à conserver un régime laminaire. Travailler en régime laminaire a pour intérêt de nécessiter moins de ressources lors des simulations numériques ; celles-ci feront l'objet de la section suivante. La subtilité du dimensionnement se trouve donc dans le choix du nombre de Reynolds. Le nombre de trous peut alors être calculé à partir de l'équation suivante :

$$n_{real} = \sqrt{\frac{9 \times S_{t50} 16 \rho^3 Q^2}{\rho_p d_{50}^2 C_c \pi^2 \eta^2 Re^3}} \quad (3.11)$$

Il est nécessaire d'arrondir cette valeur  $n_{real}$  afin d'obtenir un nombre  $n$  entier. Afin de minimiser l'erreur engendrée par cette opération, le nombre de Reynolds doit être choisi de sorte que le résultat de l'équation 3.11 soit le plus proche possible d'un entier. Exemple :

$$\begin{cases} \text{Si } n_{real} = 3.05 \text{ la valeur } n = 3 \text{ est acceptée car } err \simeq 1.66\% \\ \text{Si } n_{real} = 3.50 \text{ la valeur } n = 3 \text{ est rejetée car } err \simeq 16.6\% \end{cases} \quad (3.12)$$

Dans le tableau 3.1 sont présentés les résultats de calcul obtenus pour les trois étages d'impaction permettant d'obtenir des diamètre de coupure de 10, 2,5 et 0,3  $\mu\text{m}$  pour un débit de 3 Lpm. Pour chaque étage, différents nombres de Reynolds ont été testés. Ceux-ci permettent d'obtenir différentes configurations de diamètre et nombre de trous  $(W, n)$ .

Diamètre de coupure désiré $d_{50}$ en $\mu\text{m}$	Nombre de Reynolds	$n_{real}$	Nombre de trous $n$	Diamètre des trous $W(\text{mm})$
10	203	6,99	7	2,84
	295	3,9902	4	3,42
	470	1,9842	2	4,30
	720	1,0465	1	5,61
2,5	397	9,9820	10	1,01
	630	4,9934	5	1,28
	884	3,0042	3	1,52
	1840	1,0004	1	2,19
0,3	610	36,023	36	0,18
	1006	17,009	17	0,23
	2275	5,0015	5	0,35
	2640	4,0010	4	0,38

TABLE 3.1 – Dimensionnement des trous des étages de l'impacteur en fonction du nombre de Reynolds pour un débit de 3 Lpm.

### 3.3.2/ SIMULATIONS

L'objectif de ces simulations est de permettre la validation des calculs théoriques et la détermination de la configuration optimale ; c'est-à-dire celle offrant la caractéristique la plus abrupte possible. Pour ce faire, une approche originale a été proposée dans cette thèse qui, à notre connaissance, n'a pas été considérée dans la littérature pour ce type d'application.

#### 3.3.2.1/ MÉTHODES DES ÉLÉMENTS FINIS

Les simulations ont été réalisées par la méthode des éléments finis. Celle-ci permettant d'obtenir une solution numérique approchée d'équations aux dérivées partielles, associées à des conditions aux limites bien définies [151]. Le principe repose sur la décomposition, ou discrétisation, du domaine considéré en sous domaines appelés **éléments finis**. Ces éléments sont composés de points appelés **nœuds**, c'est au niveau de ces points que seront déterminées les inconnues du problème. Chaque nœud est associé à une fonction d'interpolation appelée aussi fonction de base. Selon le degré de ces fonctions d'interpolation, des nœuds supplémentaires sont ajoutés (cf. figure 3.4).

L'ensemble des éléments composant le domaine est appelé maillage. Dans la figure 3.5 est représenté le maillage d'un domaine 2D circulaire par triangulation, c'est-à-dire composé uniquement d'éléments triangulaires.

Dans un calcul par la méthode des éléments finis, la solution est une combinaison linéaire des fonctions de base en tout point du maillage. Le nombre de degrés de liberté varie selon la nature du problème. Dans notre cas, les équations de Navier et Stokes seront étudiées en trois dimensions ; impliquant donc trois degrés de liberté liés aux trois composantes du vecteur de vitesse du flux d'air et un quatrième degré de liberté correspondant à la pression.

Pour effectuer cette étude, le logiciel d'éléments finis **Comsol Multiphysics** sera utilisé [152]. Tout

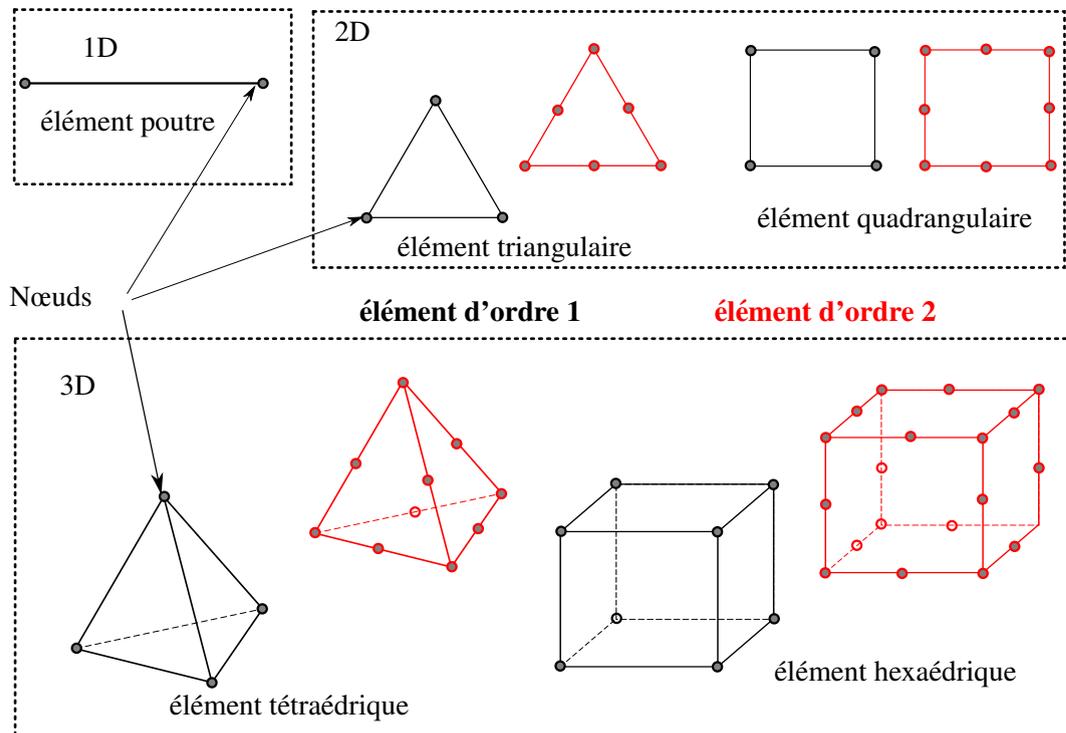


FIGURE 3.4 – Représentation d'éléments finis pour divers types et ordres.

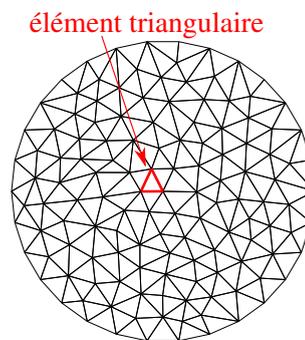


FIGURE 3.5 – Illustration d'un maillage par triangulation.

d'abord, le problème fluide sera résolu pour ensuite faire un suivi des particules dans le flux et étudier ainsi l'efficacité de la filtration et de l'impaction.

### 3.3.2.2/ CALCUL FLUIDIQUE ET SUIVI DES PARTICULES

Le calcul fluide est basé sur les équations de Navier et Stokes en régime stationnaire [153]. Le modèle se compose de deux parties représentées dans la figure 3.6.

Tout d'abord, les trous sont modélisés par des cylindres dont le diamètre et le nombre ont été définis dans la section précédente. Pour les conditions aux limites, un débit de 3 Lpm est imposé en entrée et une vitesse nulle aux bords du cylindre (cf. écoulement de Poiseuille dans la section 1.3.1.2).

La zone d'impaction est également choisie de forme cylindrique dont la partie inférieure correspond à la plaque d'impaction. La vitesse est considérée nulle à ce niveau. Les surfaces extérieures du cylindre sont, quant à elles, laissées libres. Les dimensions de cette zone sont moins critiques mais doivent tout de même être judicieusement choisies. En effet, la distance entre les trous et la plaque d'impaction doit respecter la condition  $S/W \geq 1$  mentionnée dans la section précédente.

Les éléments du maillage sont choisis tétraédriques et d'ordre 2. Les gradients de vitesse étant plus importants au niveau des trous, le risque d'erreur dû à la discrétisation devient plus grand. Par conséquent, cette zone est maillée plus finement. Les maillages des différentes configurations d'étages d'impaction sont présentées dans la figure 3.6.

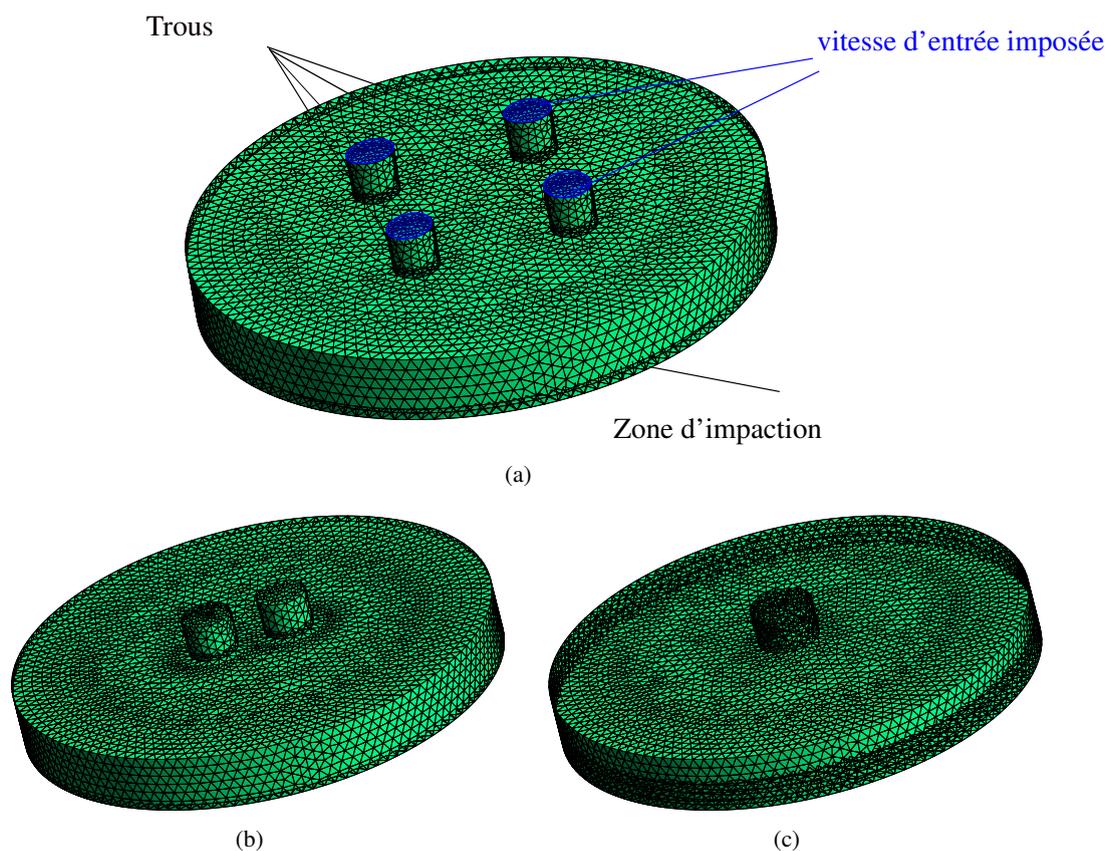


FIGURE 3.6 – Représentation du maillage d'un modèle d'étage d'impaction PM<sub>10</sub> fonctionnant à 3 Lpm : (a) quatre trous  $Re = 295$ , (b) deux trous  $Re = 470$  et (c) un seul trou  $Re = 720$  (image générée par le logiciel de maillage "gms" [154]).

Comme le montrent les figures 3.7 et 3.8, les simulations basées sur les équations de Navier et Stokes permettent de déterminer les valeurs de vitesse du fluide ainsi que celles de la pression en tout point du maillage. Il est possible de constater que la vitesse présente une valeur maximale au centre des trous, correspondant à un écoulement laminaire ou de Poiseuille présenté dans le chapitre 1. Ces informations, en particulier les valeurs de vitesse, sont déterminantes pour prédire le comportement des particules lors du phénomène de l'impaction. En effet, les forces de friction responsables de l'entraînement des particules dans le flux dépendent directement de la vitesse de celui-ci.

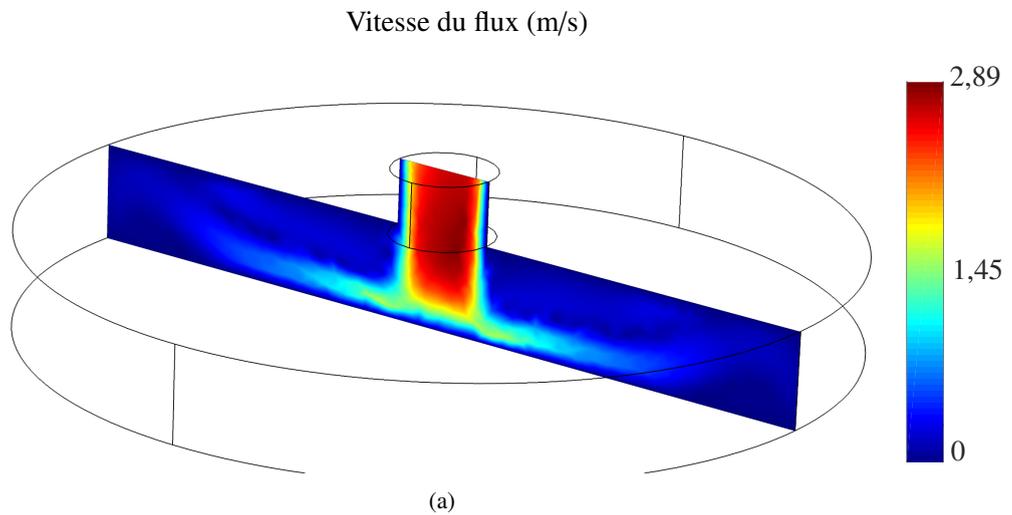


FIGURE 3.7 – Vitesse du flux d'un étage d'impaction PM10 fonctionnant à 3 Lpm à un seul trou  $Re = 720$ .

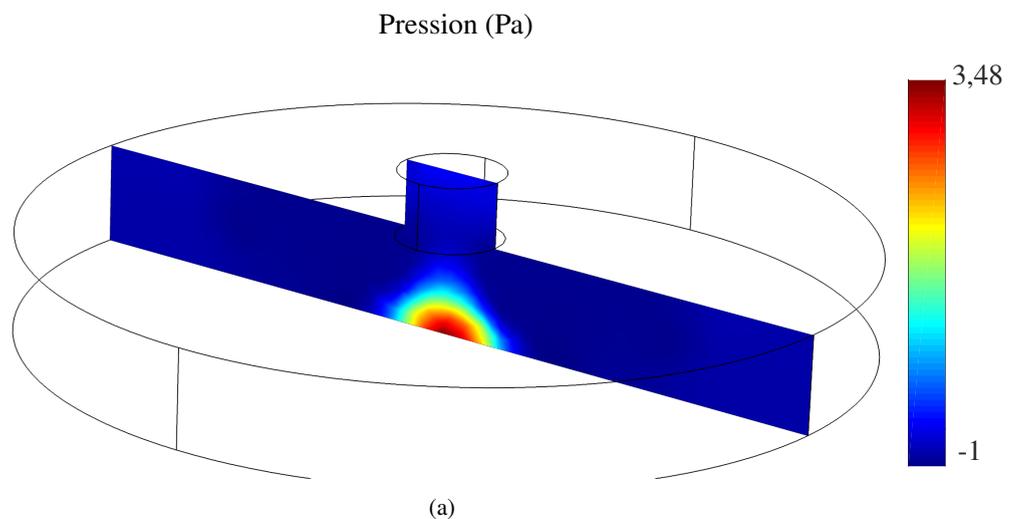


FIGURE 3.8 – Pression de l'air d'un étage d'impaction PM10 fonctionnant à 3 Lpm à un seul trou  $Re = 720$ .

L'étude se prolonge par le suivi du mouvement des particules dans le flux d'air dont la vitesse stationnaire a été établie précédemment. La procédure consiste en l'injection d'une certaine quantité de particules à l'entrée des orifices et en l'étude du nombre de celles-ci impactées sur la plaque de collection. Les particules sont choisies sphériques de masse volumique  $\rho = 1 \text{ g/cm}^3$  correspondant à la définition du diamètre aérodynamique (cf. section 1.4). Les particules entraînées par la force de friction arrivent sur la plaque d'impaction et s'y déposent du fait de conditions aux limites spécifiques annulant leur vitesse. Il est à noter qu'une telle hypothèse, celle du collage de toutes les particules, est irréalisable dans la réalité car dans ce cas, certaines particules sont sujettes à des rebonds et autres phénomènes de ré-entraînement dans le flux. Cependant, ce type de phénomène n'est pas pris en compte dans la simulation. L'efficacité de collection est alors estimée

via la formule suivante :

$$C_{eff}[\%] = \frac{n_c}{N} \times 100, \quad (3.13)$$

où  $N$  est le nombre de particules injectées en entrée du modèle et  $n_c$  le nombre des particules collectées sur la plaque.

Pour obtenir la caractéristique d'efficacité de collection, la taille des particules est variée en appliquant un balayage sur la valeur du diamètre. Le calcul du ratio des particules collectées sur celles injectées est effectué, pour chaque diamètre de particule, en utilisant la formule 3.13. Ce calcul a pour objectif de déterminer les diamètres de coupure correspondant à  $C_{eff} = 50\%$ . Ensuite, l'étude des courbes permet de choisir la configuration optimale, c'est-à-dire celle offrant la caractéristique la plus abrupte.

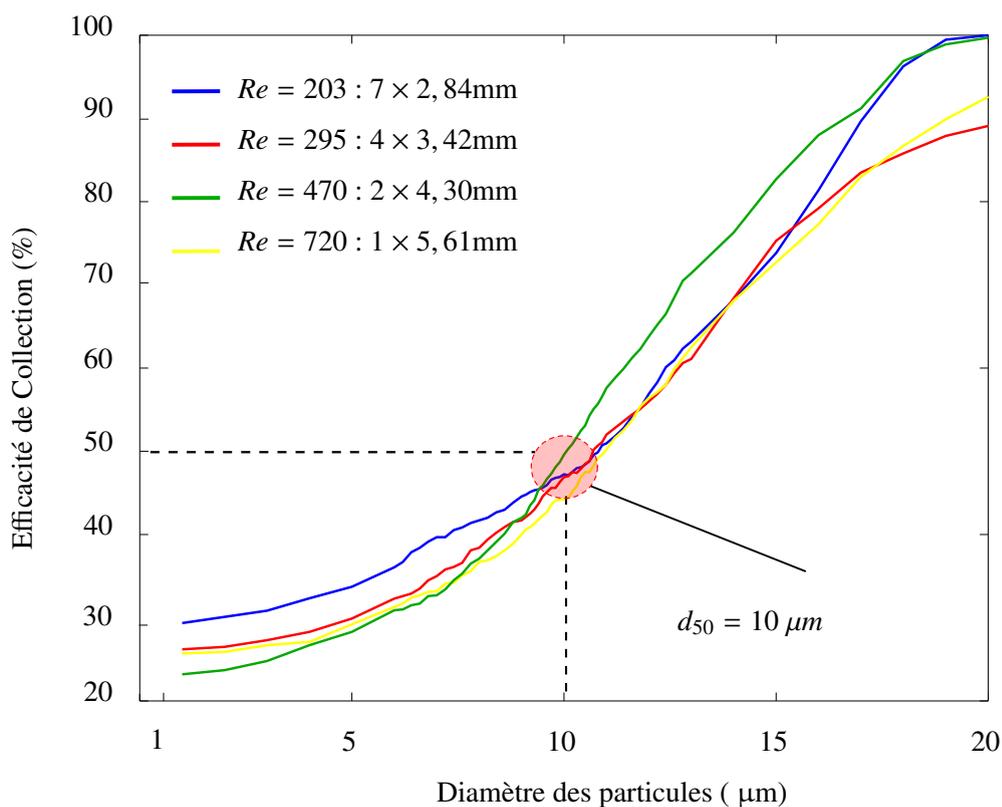


FIGURE 3.9 – Efficacité de collection simulée d'un étage d'impacteur fonctionnant à 3 Lpm avec un diamètre de coupure  $d_{50} = 10 \mu\text{m}$  : en bleu une configuration à sept trous ( $Re = 203$ ), en rouge à quatre trous ( $Re = 295$ ), en vert à deux trous ( $Re = 470$ ) et en jaune à un seul trou ( $Re = 720$ ).

Dans les figures 3.9 et 3.10 sont présentées les courbes d'efficacité des étages d'impaction  $d_{50} = 10 \mu\text{m}$  et  $d_{50} = 2,5 \mu\text{m}$ . Les différentes caractéristiques correspondent aux diverses configurations envisagées en fonction du nombre de Reynolds. Les diamètres de coupure obtenus sont proches de ceux attendus théoriquement et ce, pour toutes les configurations (cf. tableau 3.2). En effet, que ce soit pour l'étage  $d_{50} = 10 \mu\text{m}$  ou  $d_{50} = 2,5 \mu\text{m}$ , seul un léger décalage peut être observé au niveau de la valeur  $d_{50}$ .

Toutefois, aucune configuration ne semble offrir une caractéristique significativement plus abrupte correspondant à une filtration plus efficace.

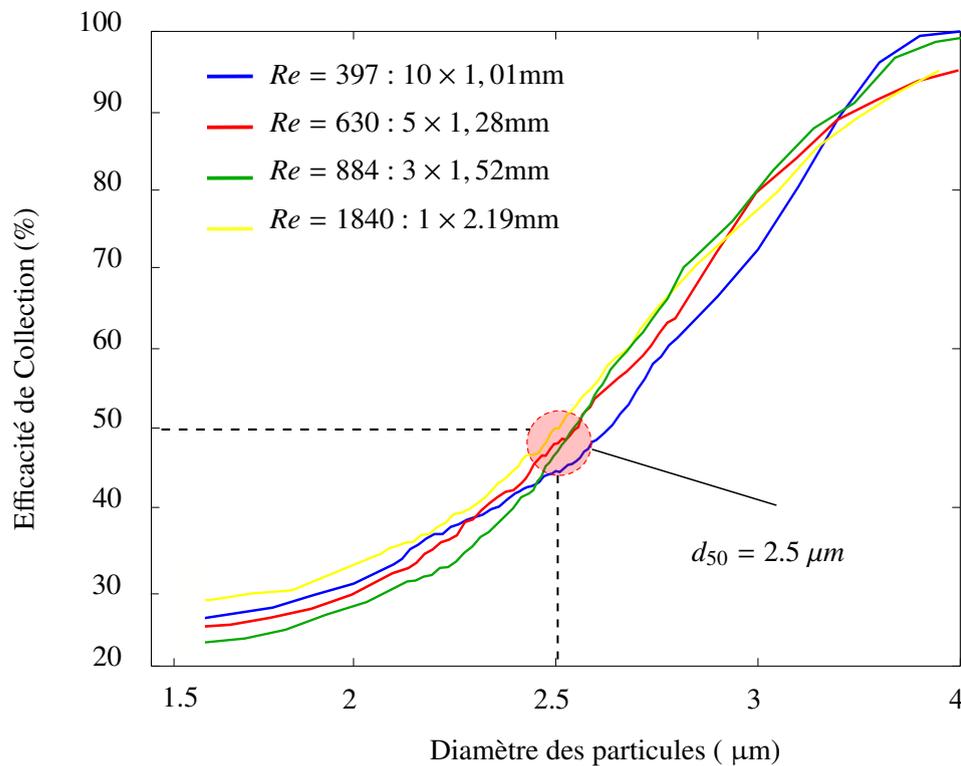


FIGURE 3.10 – Efficacité de collection simulée d'un étage d'impacteur fonctionnant à 3 Lpm avec un diamètre de coupure  $d_{50}=2,5 \mu\text{m}$  : en bleu une configuration à dix trous ( $Re = 397$ ), en rouge à cinq trous ( $Re = 630$ ), en vert à trois trous ( $Re = 884$ ) et en jaune à un seul trou ( $Re = 1840$ ).

$d_{50}$ désiré ( $\mu\text{m}$ )	Nombre de Reynolds	Configuration $n \times W$ (mm)	$d_{50}$ simulé
10	203	$7 \times 2,84$	10,1
	295	$4 \times 3,42$	10,2
	470	$2 \times 4,30$	9,9
	720	$1 \times 5,61$	10,3
2,5	397	$10 \times 1,01$	2,61
	630	$5 \times 1,28$	2,55
	884	$3 \times 1,52$	2,57
	1840	$1 \times 2,19$	2,48
0,3	2275	$5 \times 0,35$	0,28
	2640	$4 \times 0,38$	0,31

TABLE 3.2 – Tableau de comparaison des diamètres de coupure obtenus par simulation.

### 3.3.2.3/ CONCLUSION DES SIMULATIONS ET CHOIX DE LA CONFIGURATION

La première observation qui ressort des simulations effectuées par la méthode des éléments finis est leur correspondance avec les prévisions théoriques. En effet, les diamètres de coupure simulés correspondent bien à ceux attendus (cf. tableau 3.2). Le design optimal sera choisi en considérant plusieurs facteurs, à savoir :

- la chute de pression :  
Celle-ci doit être minimale afin de réduire la consommation énergétique de la pompe. En effet, celle-ci sera d'autant plus grande que la chute de pression est importante.
- la simplicité :  
Un design avec un nombre de trous minimum sera plus facile à fabriquer et par conséquent moins coûteux.
- la zone d'impaction :  
Il s'agit d'un critère déterminant, dans notre cas, car influant directement sur la sensibilité du système final. En effet, un plus grand nombre de trous entraînera forcément une zone d'impaction plus importante et inversement. La zone sensible des capteurs SAW utilisés mesure 4 × 3 mm, la zone d'impaction des particules devra donc être concentrée sur cette zone afin de minimiser la perte éventuelle de particules. Des études concernant la zone d'impaction des particules attestent que celle-ci est de l'ordre de la taille des orifices pour une taille de particules supérieure au diamètre de coupure. Pour les particules de taille proche du diamètre de coupure et supérieure, elle s'élargit et prend la forme d'un anneau [155].
- les contraintes technologiques :  
Ce critère n'entre en jeu que pour l'étage d'impaction  $d_{50}=0,3 \mu\text{m}$  car c'est pour cet étage que la taille des trous est la plus petite. Les équipements disponibles au sein de l'institut FEMTO-ST dans le service de mécanique offre la possibilité de réaliser des trous de 0,3 mm de diamètre au minimum.

En considérant l'ensemble de ces critères, une configuration à un seul trou a été choisie pour l'étage  $d_{50}=10 \mu\text{m}$ . Sur cet étage, aucune mesure n'est nécessaire puisque il s'agit des particules de diamètre supérieur à  $10 \mu\text{m}$ . Il n'y a donc pas de contrainte spécifique vis-à-vis de la surface. D'autre part, étant donnée la dimension de l'orifice à cet étage, la chute de pression est négligeable. En ce qui concerne le deuxième étage ( $d_{50}=2,5 \mu\text{m}$ ), la même configuration à trou unique sera préférée car la taille de ce dernier est du même ordre de grandeur que la surface de la zone sensible du capteur. Pour l'étage  $d_{50}=0,3 \mu\text{m}$ , en revanche, une configuration à quatre trous est visée pour maximiser la surface de la zone d'impaction. Nous nous limitons à quatre trous car les diamètres de ceux-ci correspondant aux moyens de fabrication disponible localement à FEMTO-ST.

Il est à noter que, vu la flexibilité de la méthode, il serait possible de modifier ces choix en fonction de nouveaux critères ou encore de résultats expérimentaux.

## 3.4/ ENTRÉE D'AIR

### 3.4.1/ SUR L'ÉCHANTILLONNAGE ISO-CINÉTIQUE

Dans la section 1.6, a été mentionnée l'importance de l'échantillonnage des aérosols sur les mesures. Pour que la mesure reflète la réalité, la concentration en particules du volume prélevé doit être représentative de celle de l'aérosol d'origine. Pour remplir cette condition, la vitesse du flux à l'entrée de l'impacteur doit être égale à la vitesse de prélèvement. Dans ce cas, l'échantillonnage est dit iso-cinétique.

Dans le cas où la vitesse de prélèvement est supérieure à la vitesse du flux à l'entrée, on parle de prélèvement super-iso-cinétique, si elle est inférieure, on parle de prélèvement sous-iso-cinétique [67]. Dans ces deux configurations, le volume échantillonné n'est plus représentatif de l'aérosol d'origine. Pour quantifier cette représentativité, le terme d'efficacité d'aspiration de l'entrée d'air  $\eta_{asp}$  doit être défini. Il correspond au ratio de la concentration du volume prélevé sur celle de l'aérosol d'origine  $\eta_{asp} = \frac{C}{C_0}$ .

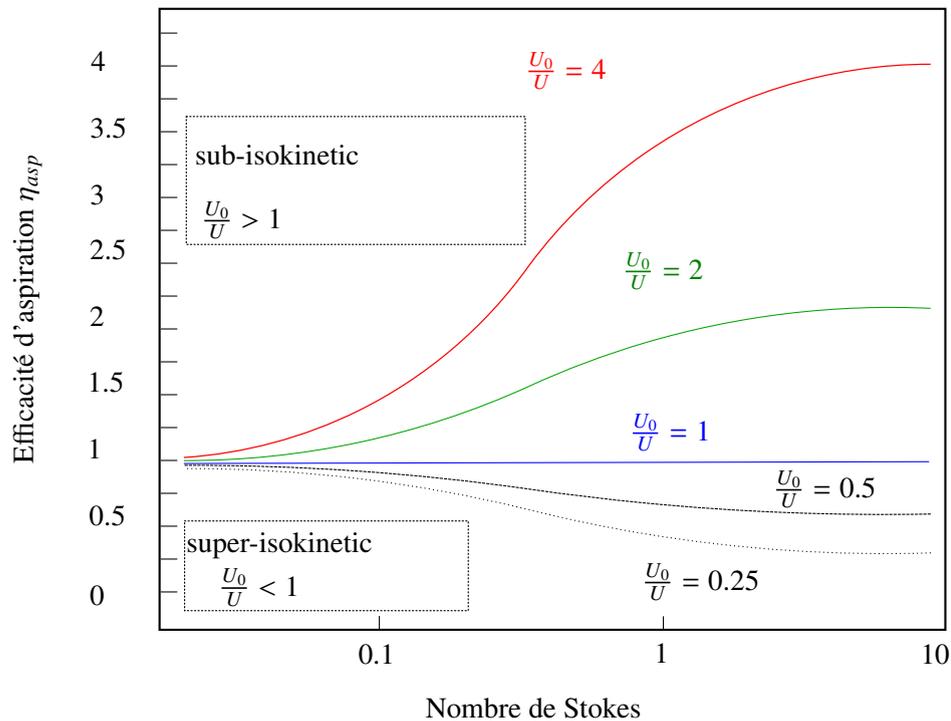


FIGURE 3.11 – Efficacité d'aspiration  $\eta_{asp}$  en fonction du nombre de Stokes pour différents ratios  $\frac{U_0}{U}$  [67]

Dans le graphe de la figure 3.11 est représentée l'efficacité d'aspiration pour différents ratios de vitesse de prélèvement sur celle de l'air ambiant  $\frac{U_0}{U}$  en fonction du nombre de Stokes. Ce dernier étant calculé à partir de la vitesse de l'air ambiant  $U_0$  et du diamètre de l'entrée d'air. Pour de petites valeurs du nombre de Stokes ( $S_{tk} < 0,1$ ), l'efficacité est peu influencée par le ratio de vitesse  $\frac{U_0}{U}$ . En revanche, dès que le nombre de Stokes dépasse 0,1, l'efficacité d'aspiration devient très dépendante du nombre de Stokes. Dans le cas idéal, c'est-à-dire lors d'un prélèvement iso-cinétique ( $\frac{U_0}{U} = 1$ ),  $\eta_{asp} = 1$  et ce, quelque soit le nombre de Stokes. En revanche, dans le cas d'un échantillonnage sous-iso-cinétique ou super-iso-cinétique, l'efficacité est différente de 1. Ce qui signifie, que le prélèvement d'air n'est pas représentatif de la concentration des particules présentes dans l'aérosol d'origine. L'application d'un facteur correctif sur la mesure serait alors nécessaire.

Respecter la condition de l'iso-cinétisme impliquerait une régulation de la vitesse de prélèvement en fonction de la vitesse de l'air ambiant, c'est-à-dire celle du vent. Pour cela, il serait alors nécessaire de mesurer la vitesse et la direction du vent, puis de modifier la vitesse de prélèvement en adaptant le débit de pompage. Or, dans notre système, cela est impossible puisque le débit doit être fixe pour permettre une filtration efficace.

Dans tous les cas, il pourrait être envisagé pour le projet P'AIR, d'appliquer des corrections mathématiques sur les mesures en utilisant une des méthodes décrites par Belyaev [156]. Pour déterminer la vitesse du vent extérieur, il est possible d'utiliser une girouette ou les données météorologiques de la zone concernée obtenues via le réseau.

### 3.4.2/ DESIGN DE LA CHEMINÉE D'ENTRÉE

Le rôle de la cheminée située au sommet de l'impacteur est d'une part d'empêcher les grosses particules de poussières ou les insectes de pénétrer dans le système d'impaction et d'autre part, d'effectuer l'échantillonnage avec un maximum d'efficacité. Elle se compose d'une cheminée et d'un chapeau de protection (cf. figure 3.12). Différents designs peuvent être trouvés dans la littérature [157, 158]. En s'inspirant de ces travaux, une entrée d'air spécifique à l'impacteur P'AIR a été conçue. Celle-ci est représentée dans la figure 3.12. Quatre ouvertures elliptiques ont été prévues au sommet de la pièce, permettant à l'aérosol de pénétrer quelque soit la direction du flux. Chacune de ces entrées d'air présente une surface de 20 mm<sup>2</sup> entraînant une vitesse d'aspiration moyenne  $v_{asp}$  de 0.6225 m/s.

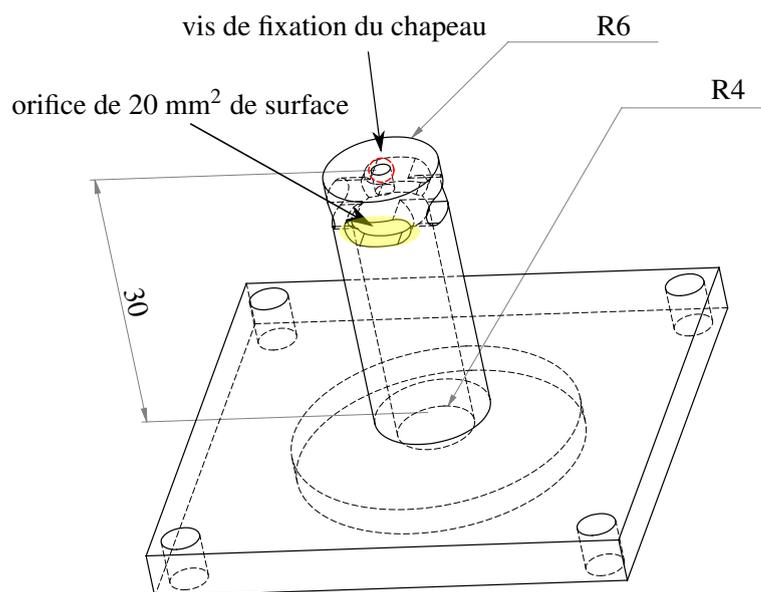


FIGURE 3.12 – Représentation schématique de la cheminée d'entrée d'air.

Au niveau du chapeau, deux formes ont été envisagées. La première de forme cylindrique est inspirée du cyclone BGI SCC1.829 développé par MesaLabs. Comme le montre la figure 3.13, la cheminée couvre intégralement l'entrée de l'impacteur. Ce design permet de bloquer toutes les particules indésirables quelle que soit leur direction d'entrée .

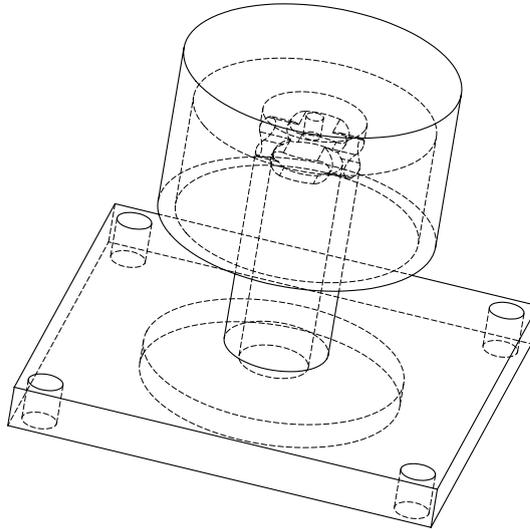


FIGURE 3.13 – Version cylindrique de la cheminée de l'impacteur P' AIR.

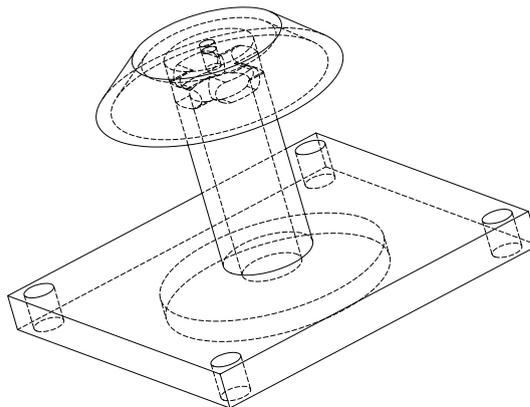


FIGURE 3.14 – Version conique de la cheminée de l'impacteur P' AIR.

Le second design (cf. figure 3.14), très proche du précédent, a pour intérêt d'offrir aux particules et au flux d'air une trajectoire présentant des changements de direction moins brutaux que la forme cylindrique. En effet, en étudiant l'écoulement du flux d'air, il a pu être mis en évidence que le design cylindrique semble provoquer un changement de direction plus radical à l'entrée de l'impacteur (cf. figure 3.15) . Par conséquent, les particules présentant une inertie importante risquent de ne pas pouvoir suivre le flux à l'entrée et provoquer des pertes. En simulant la trajectoire des particules, le design cylindrique a montré une augmentation de 30% de pertes par rapport à la forme conique à vitesse de vent extérieure constante.

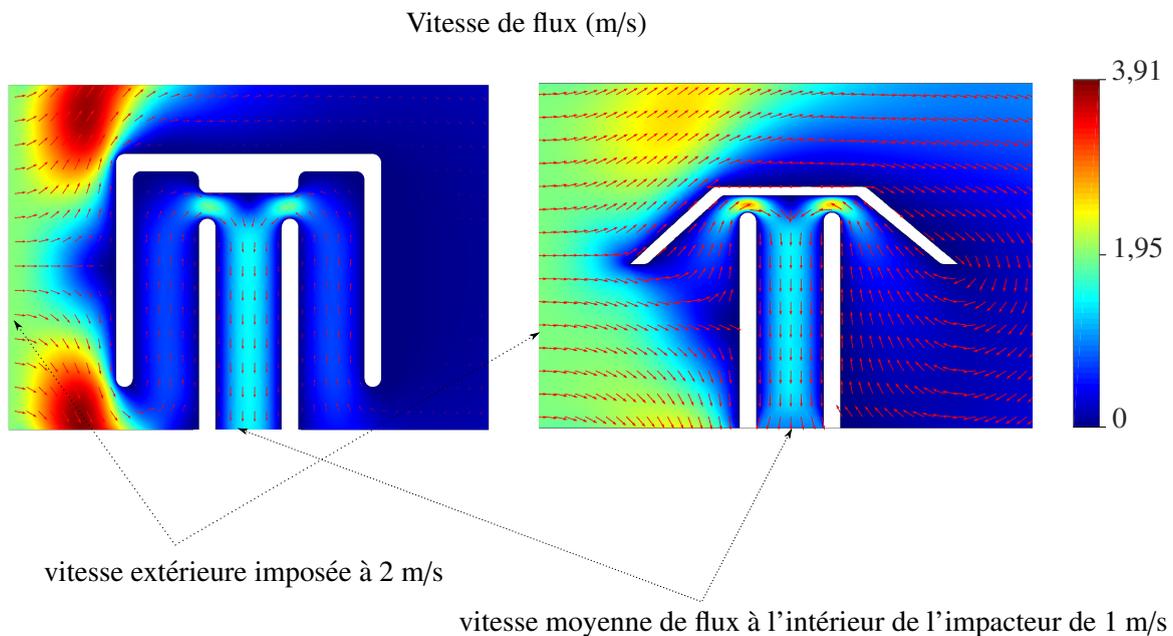


FIGURE 3.15 – Écoulement à l'entrée d'air dans un vent extérieur = 2 x la vitesse de prélèvement pour un chapeau cylindrique (à gauche) et conique (à droite)

### 3.5/ INTÉGRATION DES CAPTEURS SAW

Nous abordons à présent la partie originale de notre travail de thèse correspondant à l'intégration des capteurs SAW dans l'impacteur en cascade nouvellement conçu. Dans les impacteurs dits classiques, les plaques nécessitent d'être démontées à chaque prélèvement pour ensuite être pesées. La quantité de particules collectées à chaque étage est ainsi déterminée. Dans l'impacteur P' AIR, les capteurs SAW sont placés au niveau des plaques d'impaction, cela permet la mesure des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> en temps réel à travers un suivi de la phase à fréquence constante (cf. section 2.3.2.2).

#### 3.5.1/ CONCEPTION DES PLAQUES D'IMPACTION

Un plan de cette pièce est représenté sur la figure 3.16. Le centre de la pièce est réservé à l'emplacement des capteurs déjà montés sur circuit imprimé. Les plaques PCB sont reliées aux connecteurs SMA par l'intermédiaire de câbles coaxiaux permettant la transmission des signaux RF<sup>1</sup>. Les capteurs SAW fonctionnant en mode différentiel, quatre connecteurs SMA sont nécessaires à leur interrogation. Ce mode utilise deux lignes à retard, l'une servant à capter les particules et l'autre servant de référence. Cette dernière est couverte d'un para-film de manière à éviter le collage des particules sur sa surface. L'intérêt de travailler en mode différentiel est de s'affranchir des effets dus aux variations des paramètres externes liés aux conditions opératoires, notamment la température et la pression.

1. Radio-Fréquence

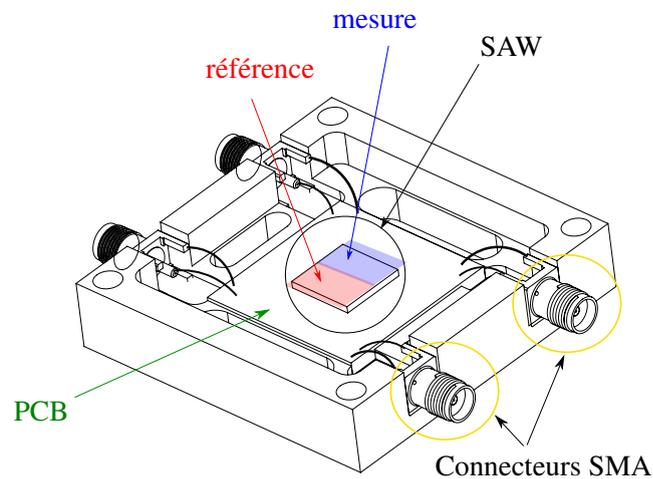


FIGURE 3.16 – Plan de la plaque d’impaction intégrant le capteur SAW.

### 3.5.2/ DISTANCE ENTRE L’ORIFICE ET LA PLAQUE

Nous avons déjà expliqué que la distance  $S$  entre l’orifice et la plaque d’impaction devait au minimum être égale au diamètre des trous  $S/W = 1$ . Hering a démontré expérimentalement que l’efficacité restait bonne avec un ratio  $S/W = 5$  [56]. Dans notre cas, la présence des connecteurs SMA impose une distance  $S$  largement au dessus :  $S > 5$  mm (cf. figure 3.17), les SMA mesurant entre 6 et 9 mm de hauteur selon les modèles. Pour l’étage PM2,5 en particulier, où le diamètre des trous est de l’ordre de 0,5 mm, le ratio  $S/W$  est supérieur à 10. La question qui s’est posée était de savoir si cela influait ou non sur la caractéristique d’efficacité de l’impaction.

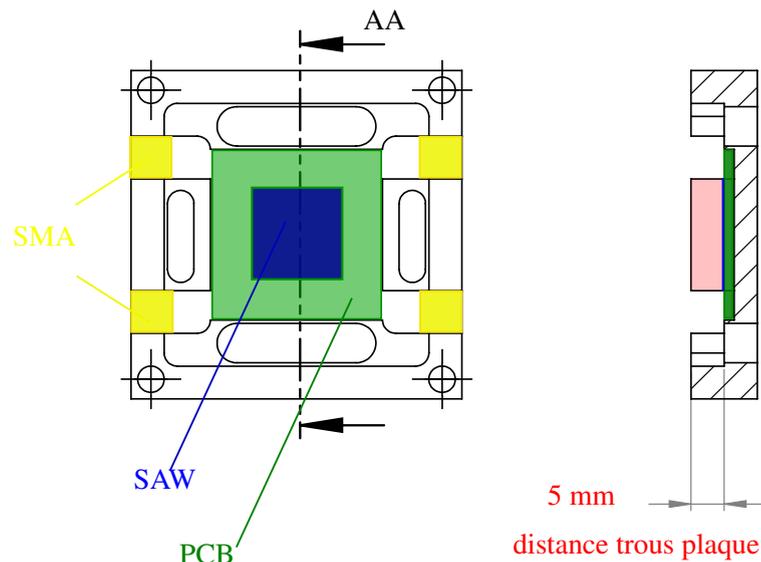


FIGURE 3.17 – Vue en coupe de la plaque d’impaction mettant en évidence la distance entre les trous et la plaque d’impaction.

Pour cela, un modèle de simulation d’un étage d’impacteur fonctionnant à 3 Lpm avec un diamètre de coupure  $d_{50}=10 \mu\text{m}$  a été étudié. Pour des raisons de simplification et de temps de calcul, la

configuration avec un seul trou  $W = 5,61$  mm correspondant à un nombre de Reynolds  $Re = 720$  a été choisie. Tout en gardant le même diamètre du trou  $W = 5,61$  mm, la distance  $S$  est modifiée de manière à balayer l'ensemble des valeurs  $S/W$  comprises entre 1 et 10. La figure 3.18 présente les profils de vitesse obtenus pour différentes valeurs de ce ratio. Nous pouvons constater que la vitesse du flux autour de la zone d'impaction est sensiblement la même pour les différents modèles. Cette observation semble indiquer que le diamètre de coupure ne dépend pas, de manière significative, de  $S/W$  dans cette gamme de valeurs. Un suivi de particules, comme celui réalisé dans la section précédente, a permis de vérifier le maintien d'un diamètre de coupure constant pour les différentes valeurs de  $S/W$  (cf. tableau 3.3).

Par conséquent, les mêmes plaques d'impaction peuvent être utilisées sur les deux étages de mesure ( $d_{50}=0,3 \mu\text{m}$  et  $d_{50}=2,5 \mu\text{m}$ ) sans que cela compromette l'efficacité de l'impacteur.

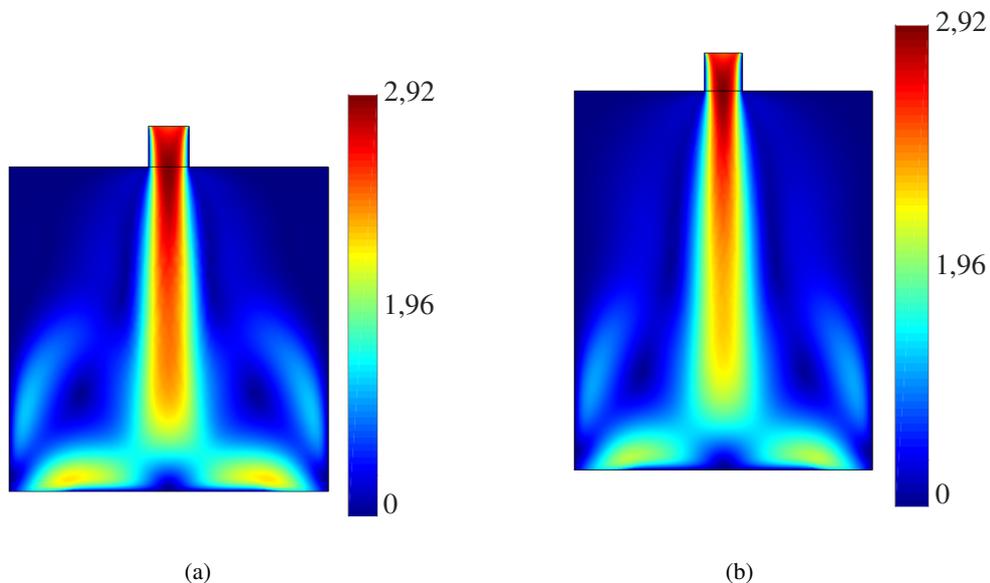


FIGURE 3.18 – Écoulement de l'air dans deux modèles d'étage d'impaction PM<sub>10</sub> : modèle avec (a)  $S/W = 8$  et (b)  $S/W = 10$  (image Comsol Multiphysics®)

$S/W$	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
$d_{50}$	10,1	9,8	10,2	10,1	10,1	9,9	10,3	10,2	9,8	10,2

TABLE 3.3 – Influence de la distance entre le trou et la plaque pour un étage d'impaction  $d_{50}=10 \mu\text{m}$ .

### 3.5.3/ PREMIER PROTOTYPE P' AIR

En suivant les étapes de conception décrites dans les sections précédentes, un premier prototype d'impacteur fonctionnant à 3 Lpm et intégrant deux capteurs SAW pour la mesure des particules PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub> a été fabriqué.

## 3.5.3.1/ PLAN DU PREMIER PROTOTYPE

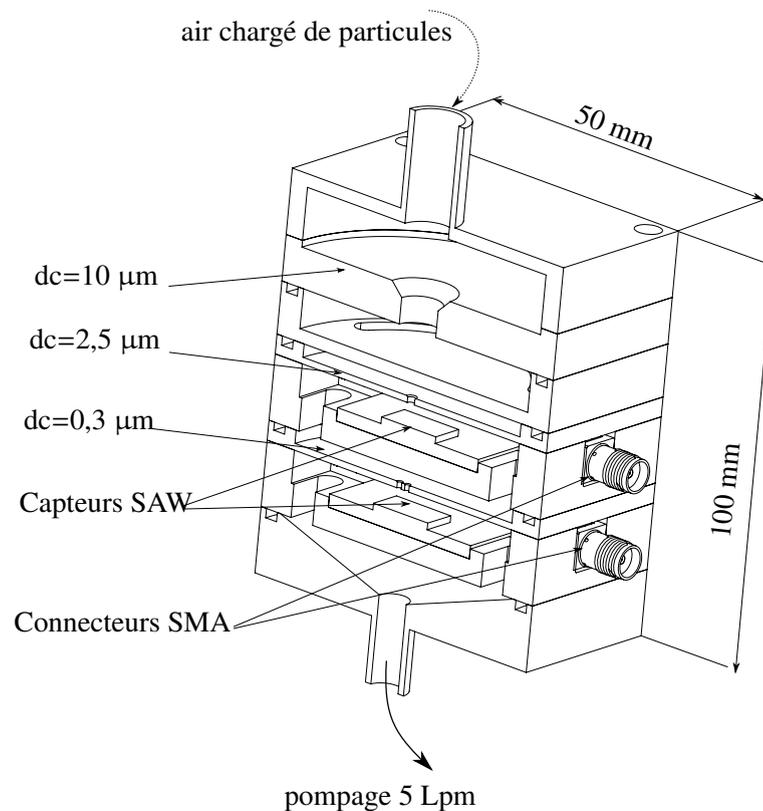


FIGURE 3.19 – Illustration de l'assemblage du premier prototype.

Sur la figure 3.19 est présenté un plan en coupe du premier prototype P'AIR. Ce système est composé de plusieurs étages :

- La pièce du dessus est l'entrée permettant à l'air chargé de particules de pénétrer dans le système.
- Le premier étage est un étage d'impaction de diamètre de coupure  $d_{50} = 10 \mu\text{m}$ . Les particules collectées sont de diamètre supérieur à  $10 \mu\text{m}$  et ne sont pas mesurées.
- À l'étage suivant, les particules qui cheminent sont de diamètre inférieur à  $10 \mu\text{m}$ . Dans cet étage, le diamètre de coupure est  $d_{50} = 2,5 \mu\text{m}$ . Par conséquent, les particules collectées au niveau du capteur seront de diamètre compris entre  $2,5 \mu\text{m}$  et  $10 \mu\text{m}$ , il s'agit des particules grossières. Cet étage sera désigné par "PM10" bien qu'il ne couvre que la gamme des particules grossières.
- À l'étage qui suit, seules les particules de diamètre inférieur à  $2,5 \mu\text{m}$  seront collectées. Dans cet étage, le diamètre de coupure est  $d_{50} = 0,3 \mu\text{m}$ . Par conséquent, les particules collectées sont de taille comprise entre  $0,3 \mu\text{m}$  et  $2,5 \mu\text{m}$ , il s'agit des particules fines. La quantité de particules sera mesurée par le capteur SAW positionné au niveau de la plaque d'impaction. Nous appellerons cet étage "PM2,5".
- La partie basse du système est directement reliée à une pompe fonctionnant à 3 Lpm.

Au final, le prototype aura une hauteur de 100 mm et une base de  $50 \times 50$  mm (sans prendre en

considération les connecteurs SMA).

### 3.5.3.2/ FABRICATION

A partir du schéma de la figure 3.19, le premier prototype a été fabriqué à l'institut FEMTO-ST. Le matériau utilisé fut l'aluminium car non corrosif et facile à usiner. Pour assurer l'étanchéité et garder un débit constant dans tout le système, nécessaire à l'obtention des bonnes vitesses dans les différents étages, des joints toriques ont été placés entre les différentes pièces. L'étanchéité s'est avérée problématique autour des connecteurs SMA car ces derniers sont de forme carrée. Nous avons été contraints d'ajouter du silicone autour des SMA. Il sera vu, par la suite, que ceci a entraîné une réflexion sur un autre design de plaque d'impaction. Cette évolution du système sera l'objet de la section suivante.

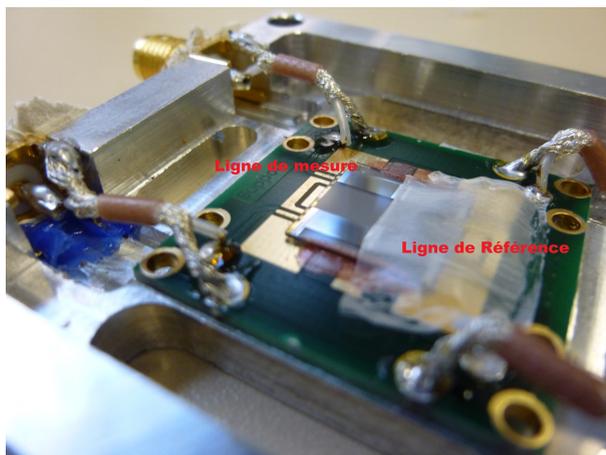


FIGURE 3.20 – Capteur intégré sur la plaque d'impaction comprenant une ligne de référence protégée et une ligne de mesure.

### 3.5.3.3/ EXPOSITION AUX PARTICULES

Le prototype P' AIR a ensuite été testé en présence de particules issues de fumée de bougie. Le dispositif expérimental est similaire à celui présenté dans la section 2.5.1.1 ; le système entier impacteur/capteurs étant positionné dans la chambre (cf. figure 3.21) et la carte électronique de mesure restant à l'extérieur. Les câbles coaxiaux, assurant la transmission des signaux entre les capteurs et la carte, sont passés à travers une ouverture étanchéifiée à l'aide d'un joint. La pompe utilisée est de type Gilair<sup>TM</sup> Plus de la société Gilian® [159].

Les particules générées à partir de fumée de bougie sont majoritairement des particules fines (PM<sub>2,5</sub>) et très fines (PM<sub>1</sub>); les particules grossières étant quasiment inexistantes [160]. Le système de génération et d'injection des particules, réalisée par l'intermédiaire de fumée de bougie, ne permet pas de maintenir une concentration constante durant la totalité de l'expérience. En effet, au début de l'injection, la concentration augmente très rapidement permettant d'atteindre une valeur d'environ 220 µg/m<sup>3</sup> puis celle-ci décroît ensuite lentement. Les niveaux de concentration restent relativement constants pendant un cycle de mesure sur une période de l'ordre d'une

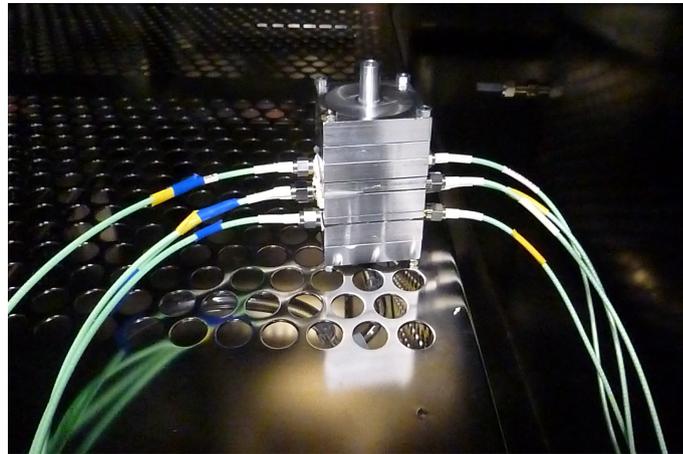


FIGURE 3.21 – Image de l'impacteur complet positionné dans la chambre de mesure permettant la réalisation de tests en présence de particules.

à deux minutes. Dans la première minute, la chute de la concentration en particules est inférieure à  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Le premier cycle de mesure est effectué lorsque la concentration particulaire dans la chambre a atteint la valeur de  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  et le second s'est effectué à une concentration de l'ordre de  $C=90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Les deux cycles de pompage durent 1 minute.

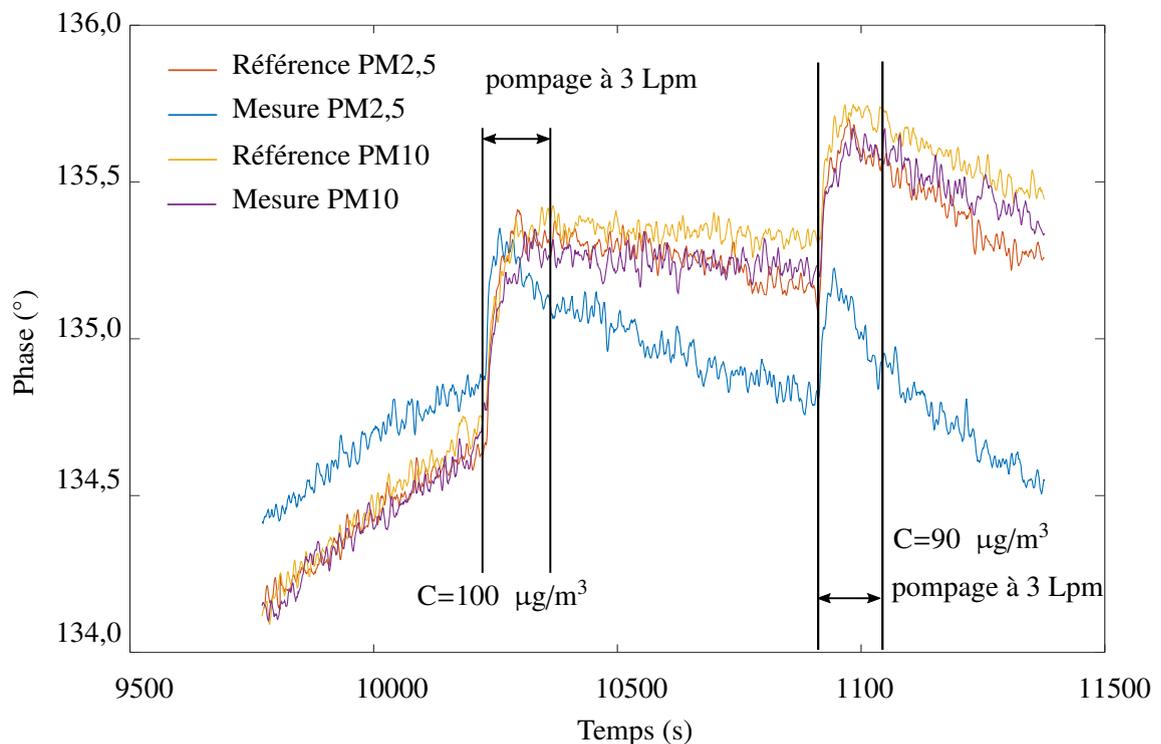


FIGURE 3.22 – Évolution des phases des quatre lignes à retard durant les deux cycles de mesure.

Sur la figure 3.22 sont présentées les évolutions des phases des quatre lignes-à-retard présentes dans les étages PM10 et PM2,5. En début de pompage, l'ensemble des phases des quatre lignes

augmentent ; ceci est dû à la présence du flux d'air. En effet, les différentes simulations effectuées montrent l'influence du pompage sur la pression entre les différents étages de l'impacteur. En outre, un changement de température se produit en surface des capteurs entraînant une modification des conditions de propagation de l'onde de surface. La faible différence entre la variation de phase des deux étages semble indiquer que celle-ci est principalement due à une variation de température. En effet, la différence de pression étant importante entre les deux étages de l'impacteur, elle devrait se traduire par une importante différence de phase, ce qui n'est pas le cas ; la température, elle, est sensiblement constante pour les deux étages car il s'agit du même flux d'air.

Ces résultats paraissent difficilement exploitables. En revanche, en soustrayant les phases des lignes de référence à celles de mesure au niveau des deux étages, les réponses correspondant à la présence des particules sur la surface des capteurs de mesure sont obtenues (cf. figure 3.23). Au niveau de l'étage PM<sub>10</sub>, la soustraction montre une réponse quasi-nulle indiquant une variation de phase identique sur les deux lignes de cet étage. Les particules injectées ayant un diamètre inférieur à 2,5  $\mu\text{m}$ , ce résultat correspond à celui attendu. Le différentiel au niveau de l'étage PM<sub>2,5</sub> montre une nette diminution de la phase lors du pompage indiquant le dépôt de particules sur la zone sensible du capteur. Ces résultats prouvent que l'impacteur est capable de collecter puis de mesurer les particules de bougie.

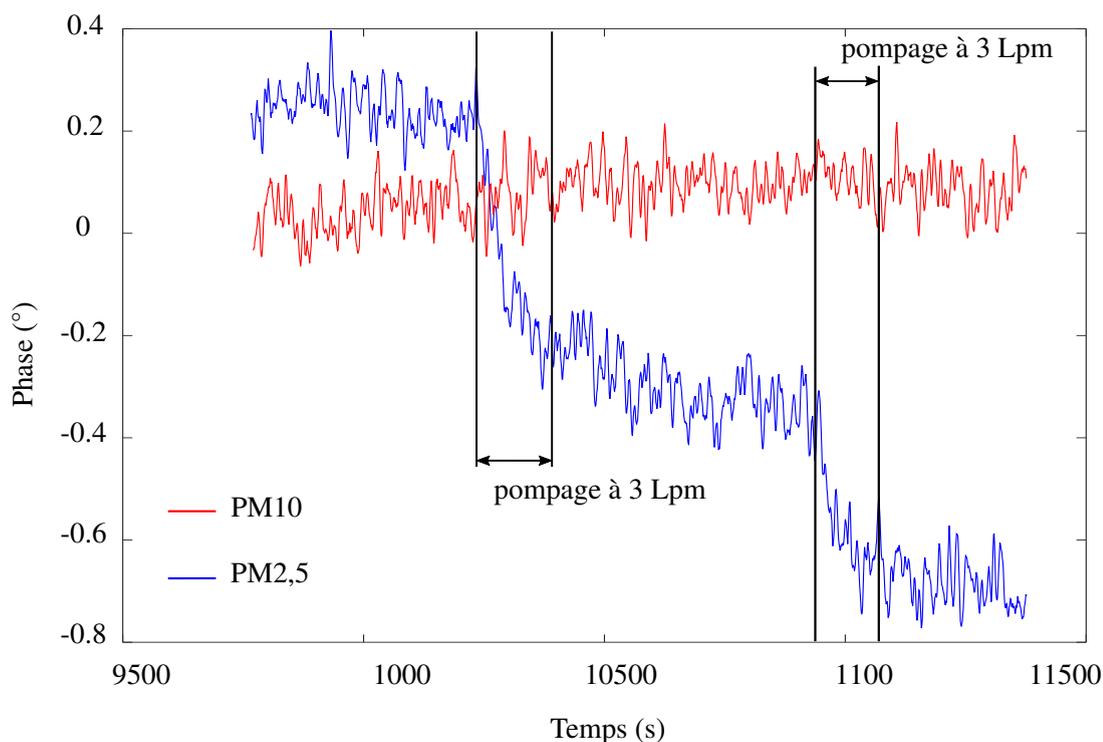


FIGURE 3.23 – Évolution différentielle des phases obtenues au niveau des étages PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> durant deux cycles de mesure en présence de fumée de bougie.

Ces premiers résultats sont positifs, cependant, la réponse au niveau de l'étage PM<sub>2,5</sub> est plus faible que prévue en comparaison avec la sensibilité théorique des capteurs SAW à ondes de Love. En effet, lors d'un cycle de pompage à 3 Lpm réalisé sur une durée d'une minute à une concen-

tration particulaire de  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (cf. figure 3.23), la masse totale de particules échantillonnées devrait donc être égale à  $V \times C = 300 \text{ ng}$ . Si nous considérons que 50 % des particules seulement sont mesurées, l'autre moitié étant sur le para-film servant à protéger la ligne de référence, la masse approximative déposée sur la zone sensible de mesure devrait alors être de 150 ng. Selon Sauerbrey, la variation de fréquence du capteur peut être estimée à partir de la masse déposée sur sa surface :  $\Delta f = \frac{S f_0 \Delta m}{A}$ . Les valeurs de fréquence de travail, de surface ainsi que de sensibilité gravimétrique du capteur étant connues,  $f_0 = 125 \text{ MHz}$ ,  $A \approx 0,16 \text{ cm}^2$  et  $S \approx 250 \text{ cm}^2/\text{g}$ , une variation de masse de 1 ng induirait un décalage de fréquence de l'ordre de 200 Hz, soit pour les dispositifs à ondes de Love utilisés, une variation de phase d'environ  $100 \text{ m}^\circ$ . Une masse déposée de 150 ng devrait donc entraîner une diminution de phase de l'ordre de  $10^\circ$  à  $15^\circ$ . Or, la variation de phase mesurée est proche de  $0,5^\circ$ , soit une réponse environ 20 fois inférieure à celle attendue théoriquement.

Plusieurs raisons peuvent expliquer cette différence. Déjà, l'équation de Sauerbrey suppose une couche homogène, ce qui n'est pas le cas pour les particules. En outre, celles-ci impactent seulement sur une petite surface de la zone sensible, correspondant à celle située en dessous des trous d'impaction [155]. En effet, des observations au microscope optique montrent que les particules ont tendance à se positionner à ce seul endroit, leur effet sur la vitesse de propagation de l'onde s'en trouvant amoindri. De plus, le fait d'utiliser un film de protection sur la ligne de référence, positionné également en dessous des trous, a pour effet de diviser par deux le nombre de particules à détecter. Par ailleurs, la zone d'impaction formant un cercle centré entre les deux lignes-à-retard, les particules ne se trouvent pas spécifiquement sur le chemin de propagation de l'onde de surface (cf. figure 3.24).

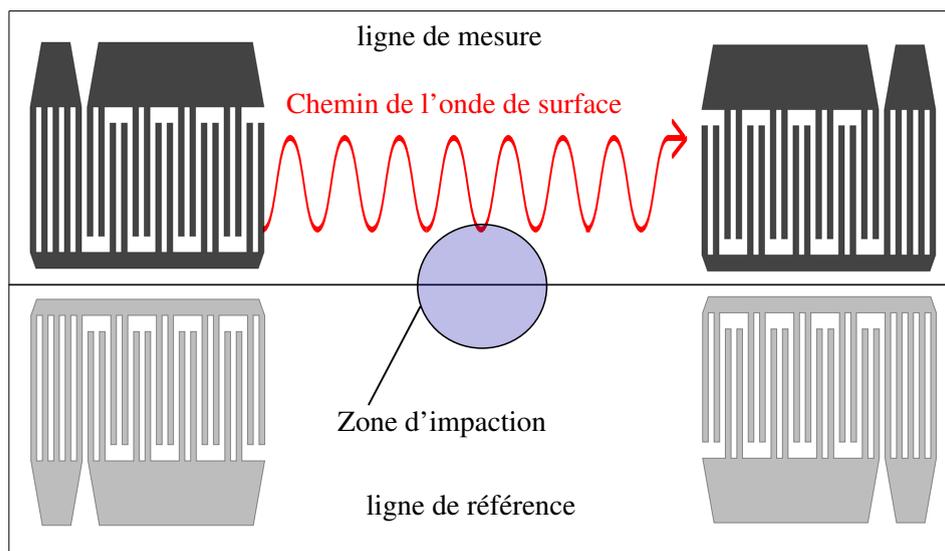


FIGURE 3.24 – Représentation de la zone d'impaction des particules par rapport au chemin de propagation de l'onde de surface.

Pour résoudre ce problème, la structure de l'impacteur a été partiellement révisée. Les plaques

d'impaction ont nécessité d'être modifiées de manière à permettre aux capteurs de recevoir le maximum de particules collectées avec une meilleure couverture de la zone sensible. Ces modifications seront présentées dans la section suivante.

### 3.6/ ÉVOLUTIONS DU SYSTÈME

#### 3.6.1/ OPTIMISATION DE LA PLAQUE D'IMPACTION

Dans le premier prototype du système, différents problèmes ont été rencontrés au niveau des plaques d'impaction incluant les capteurs. Le premier concerne l'étanchéité, qui se trouve difficilement maintenue autour des connecteurs SMA. En outre, le montage des plaques d'impaction s'est avéré rapidement compliqué, celui-ci nécessitant une soudure des câbles coaxiaux sur les connecteurs puis sur le PCB. Cette opération est non seulement chronophage mais également délicate.

Pour s'affranchir de ces difficultés, un nouveau type de plaques d'impaction a été conçu. Il s'agit d'utiliser, à présent, directement des circuits imprimés sur lesquels les capteurs SAW sont montés.

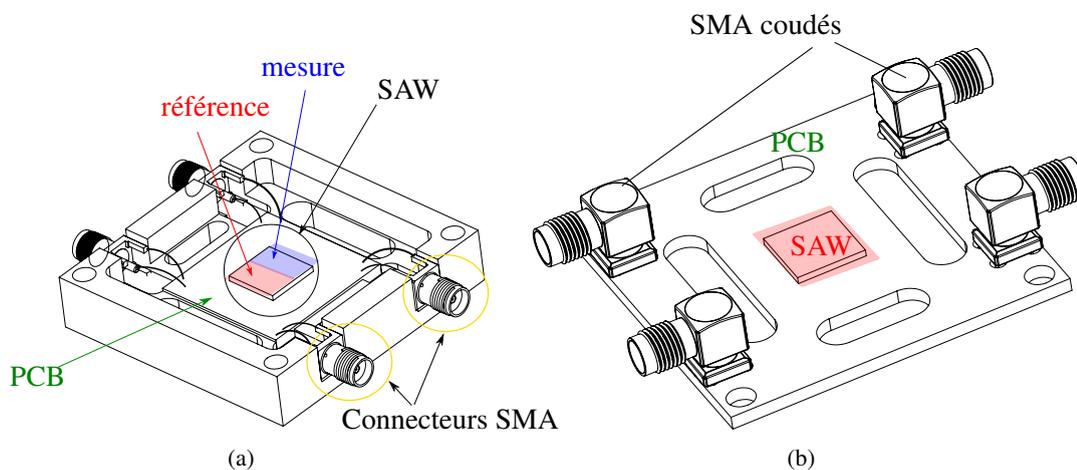


FIGURE 3.25 – Représentation schématique des plaques d'impaction : (a) version d'origine, (b) nouvelle version.

La figure 3.25 illustre ces modifications. Ce nouveau design est déjà plus fonctionnel car les connecteurs SMA sont directement soudés sur la carte sans utilisation de câbles supplémentaires. En outre, afin de conserver l'entrée des connecteurs au niveau des cotés, des SMA de type coudé ont été utilisés. Cette nouvelle approche est aussi très économique car deux pièces complexes à réaliser ne sont plus nécessaires.

Ensuite, pour obtenir un signal de plus grande amplitude, il est nécessaire de maximiser la quantité

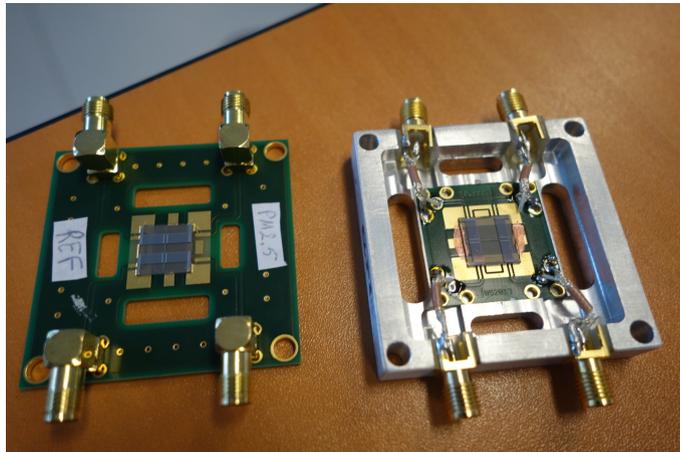


FIGURE 3.26 – Photographie des deux versions des plaques d'impaction intégrant les capteurs SAW : à droite version d'origine, à gauche nouvelle version.

de particules mesurables. Pour cela, les capteurs ont été décalés sur la plaque d'impaction. En faisant cela, il n'est plus nécessaire de protéger la ligne de référence par un film (cf. figure 3.27).

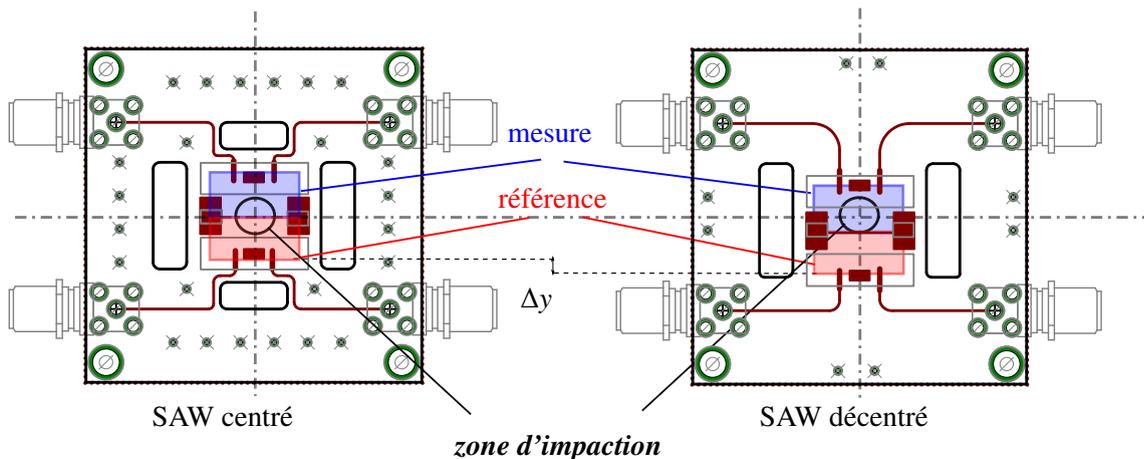


FIGURE 3.27 – Représentation des plaques d'impaction et de la zone de collection des particules (a) version avec le capteur centré, (b) capteur décentré.

Lors du montage des capteurs sur les nouvelles plaques, une inhomogénéité de la masse électrique a été constatée en raison de la taille plus importante des nouveaux PCB. La conséquence est que la ligne de base de la réponse fréquentielle des capteurs passe de -50 dB à -40 dB. Ce problème a été corrigé en augmentant le nombre de vias (environ une dizaine) autour des lignes de transmission (cf. figures 3.28 et 3.29).

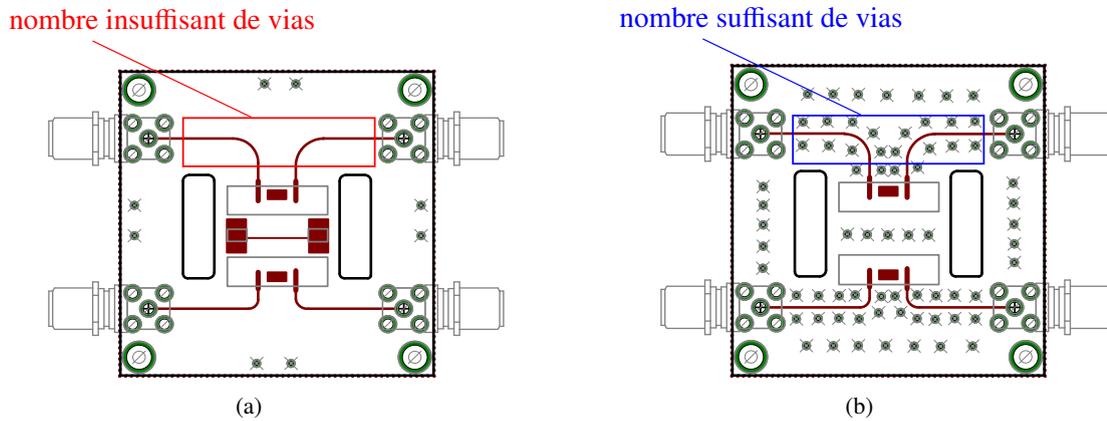


FIGURE 3.28 – Schéma de la plaque d'impactation avec les vias assurant l'homogénéité de la masse électrique : (a) version avec un faible nombre de vias, (b) nouvelle version contenant le nombre nécessaire de vias autour de la ligne de transmission.

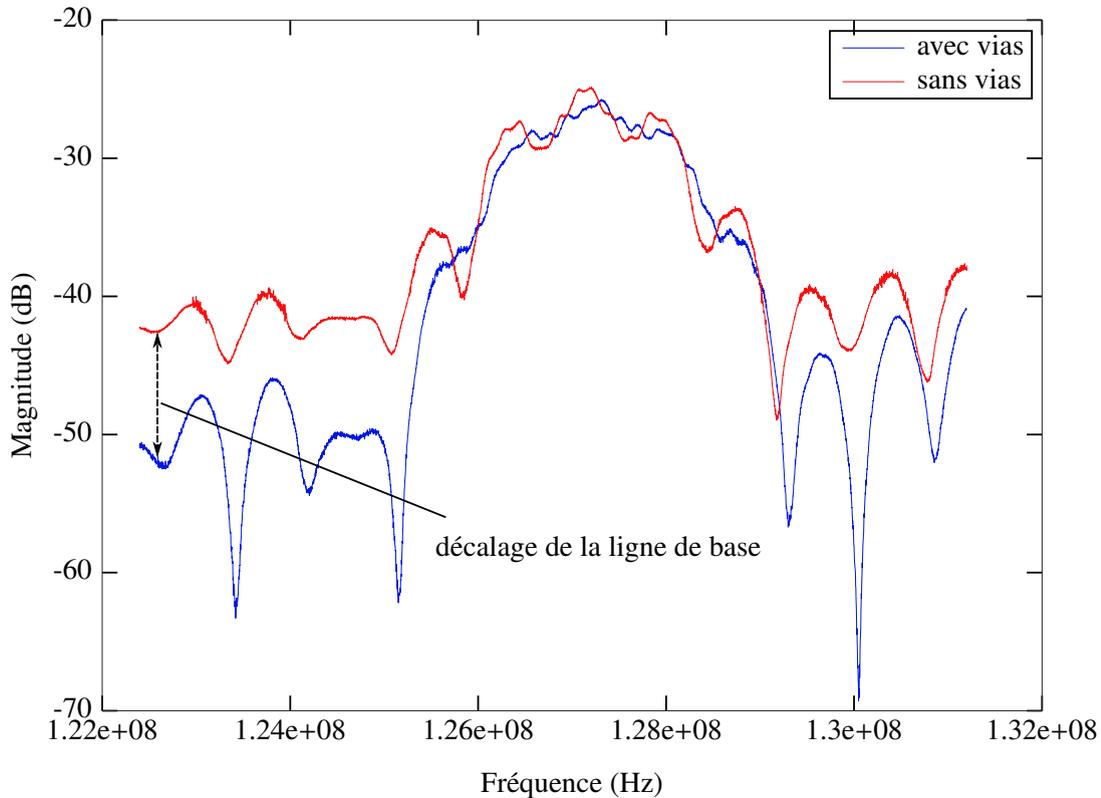


FIGURE 3.29 – Amplitudes des paramètres de transmission  $S_{21}$  de capteurs montés sur des circuits imprimés avec un nombre insuffisant de vias (en rouge) et un nombre suffisant (en bleu) mesurées par un analyseur de réseau.

### 3.7/ CONCLUSION

Dans ce chapitre, a été traitée la problématique de sélectivité des capteurs à ondes élastiques de surface vis-à-vis des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub>. Pour cela, un système de séparation de particules

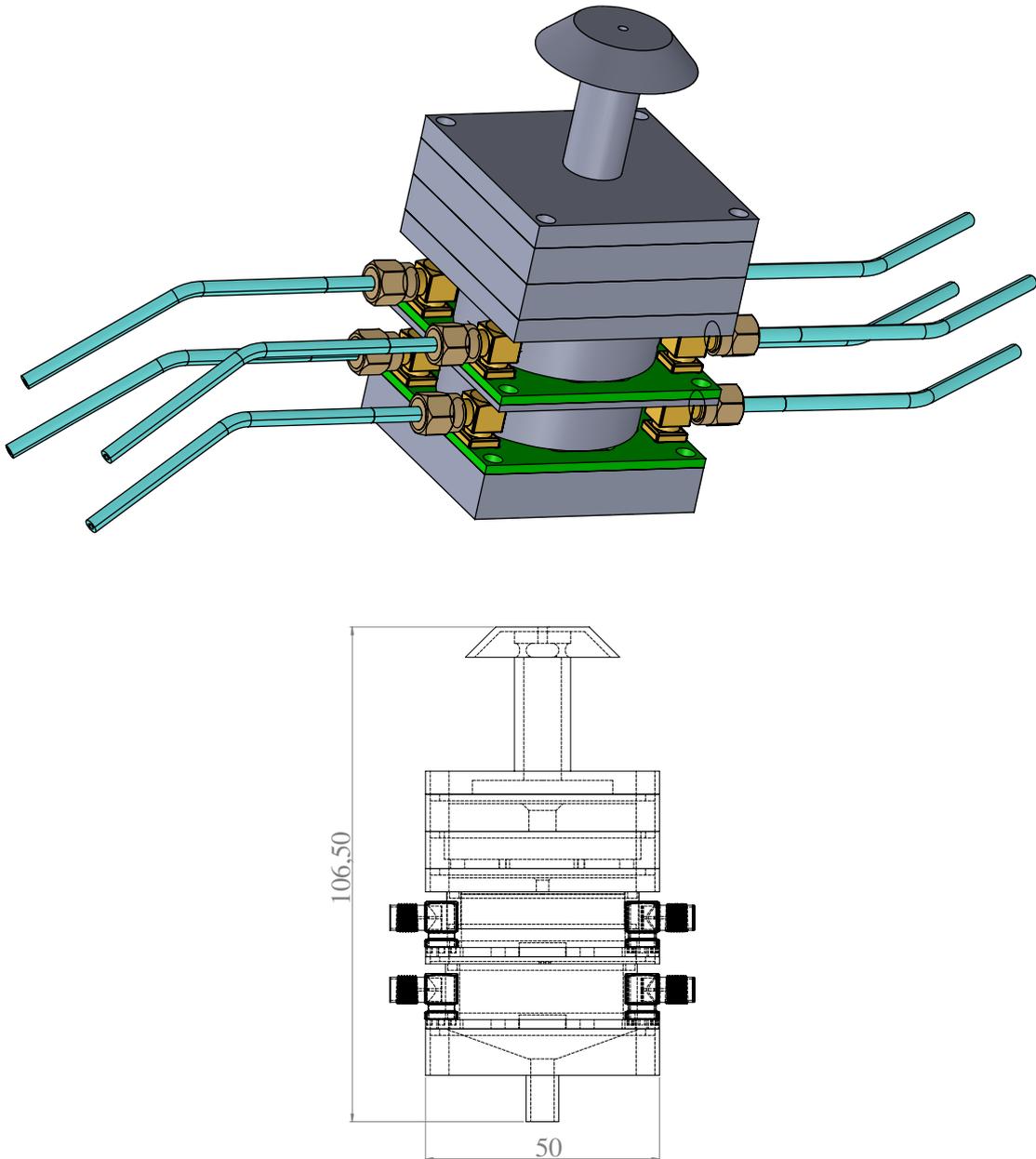


FIGURE 3.30 – Illustration de l'assemblage du deuxième prototype (image Solid Works®).

basé sur un impacteur en cascade a été imaginé. Après la description de la théorie des impacteurs, les différentes étapes de dimensionnement et de conception d'un système d'impaction fonctionnant à 3 Lpm ont été énoncées. L'intégration des capteurs SAW a nécessité le développement de plaques d'impaction spécifiques. À partir du premier prototype et des différentes optimisations présentées dans ce chapitre, il a été possible d'assembler un modèle final dont les différentes caractéristiques ont été détaillées. Cet assemblage, illustré dans la figure 3.30, a fait l'objet d'un brevet déposé en avril 2016. Le chapitre suivant sera consacré à l'évaluation de ce dispositif en présence de

particules de différentes tailles et natures sous diverses conditions expérimentales.

## MESURE DES PARTICULES ET VALIDATION DU DISPOSITIF

Dans les chapitres précédents ont été présentées les différentes étapes de conception d'un système de mesure de particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> dans l'air. La partie sensible, basée sur des capteurs à ondes élastiques de surface, a été présentée dans le chapitre 2. Elle a ensuite été intégrée dans un système d'impaction en cascade permettant la mesure en temps réel. Cette étude a permis la réalisation d'un prototype fonctionnant à 3 Lpm dont les performances seront évaluées dans ce dernier chapitre.

Tout d'abord, le système sera exposé aux particules fines PM<sub>1</sub> issues de fumée de bougie puis aux PM<sub>10</sub> provenant de fumée d'étain chauffé par un fer à souder. La capacité du système à séparer les particules selon leur taille sera étudiée, dans un premier temps, à travers la réponse des capteurs puis en analysant leur surface par microscopie optique. Pour évaluer la réponse des capteurs, leur phase sera comparée à la concentration des particules émises. La corrélation entre ces deux données pourra alors être étudiée.

Dans la seconde partie de ce chapitre, ce sont les limites du système qui seront présentées, notamment les problèmes rencontrés en présence de particules grossières où des phénomènes de rebonds peuvent apparaître. En outre, une étude sur le couplage entre les particules déposées et la surface sensible du capteur sera présentée. Pour finir, des solutions pour corriger ces problèmes seront proposées en fin de chapitre.

### 4.1/ EXPÉRIENCES EN ENVIRONNEMENT INTÉRIEUR

Lors des expériences présentées dans le chapitre précédent, la capacité du dispositif à mesurer les particules PM<sub>1</sub> issues de fumée de bougie a été montrée. Ces expériences semblent indiquer le bon fonctionnement de la filtration. En effet, les particules fines passent au travers de l'étage PM<sub>10</sub> sans s'y coller pour venir ensuite s'impacter sur l'étage PM<sub>2,5</sub> ; cette action provoquant un effet de masse. Afin de connaître la réponse de la totalité du système, celui-ci a ensuite été exposé à un aérosol contenant des particules fines et grossières. Pour cela, un aérosol émanant du chauffage d'un fil d'étain par un fer à souder a été utilisé ; celui-ci contenant majoritairement des particules PM<sub>1</sub> mais aussi des particules grossières. Par cette méthode de génération de particules, le ratio

PM1 / PM10 est de 90% environ [161].

Le banc expérimental, présenté dans la figure 4.1, est composé de l'impcteur P' AIR incluant les capteurs SAW au niveau des deux étages, d'une pompe GilAir contrôlable en débit, de l'électronique de mesure développée par Senséor et d'un ordinateur permettant le suivi de la mesure en temps réel. Une mesure comparative est réalisée en parallèle à l'aide d'un compteur optique ePM fourni et commercialisé par Ecologicsense. Ce dernier permet la mesure des PM2,5 et PM10 toutes les trois minutes après un prélèvement d'air de 20 secondes.

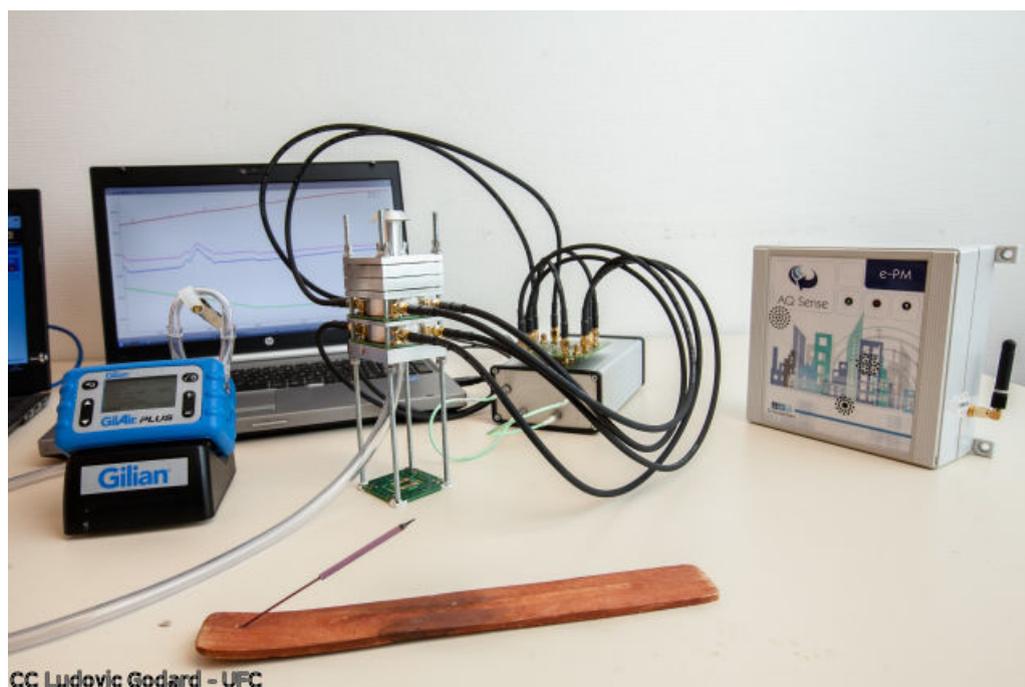


FIGURE 4.1 – Banc de caractérisation du dispositif P' AIR en environnement intérieur, contenant le système de pompage, l'électronique de mesure et la référence ePM.

Les injections de particules sont effectuées de manière successive en changeant de source. De la sorte, la différence de comportement du système en présence de particules d'origine diverse pourra être observée. Il est à noter que ce banc expérimental ne permet pas de maintenir des concentrations stables. En outre, il est très compliqué, voire impossible, de reproduire des conditions expérimentales identiques deux fois de suite.

Sur la figure 4.2 sont présentées les réponses des deux étages de l'impacteur aux cycles successifs d'injection de particules. Pour rappel, les mesures sont faites en mode différentiel ; le signal de ligne de référence étant soustrait à celui de mesure et ce, pour les deux étages.

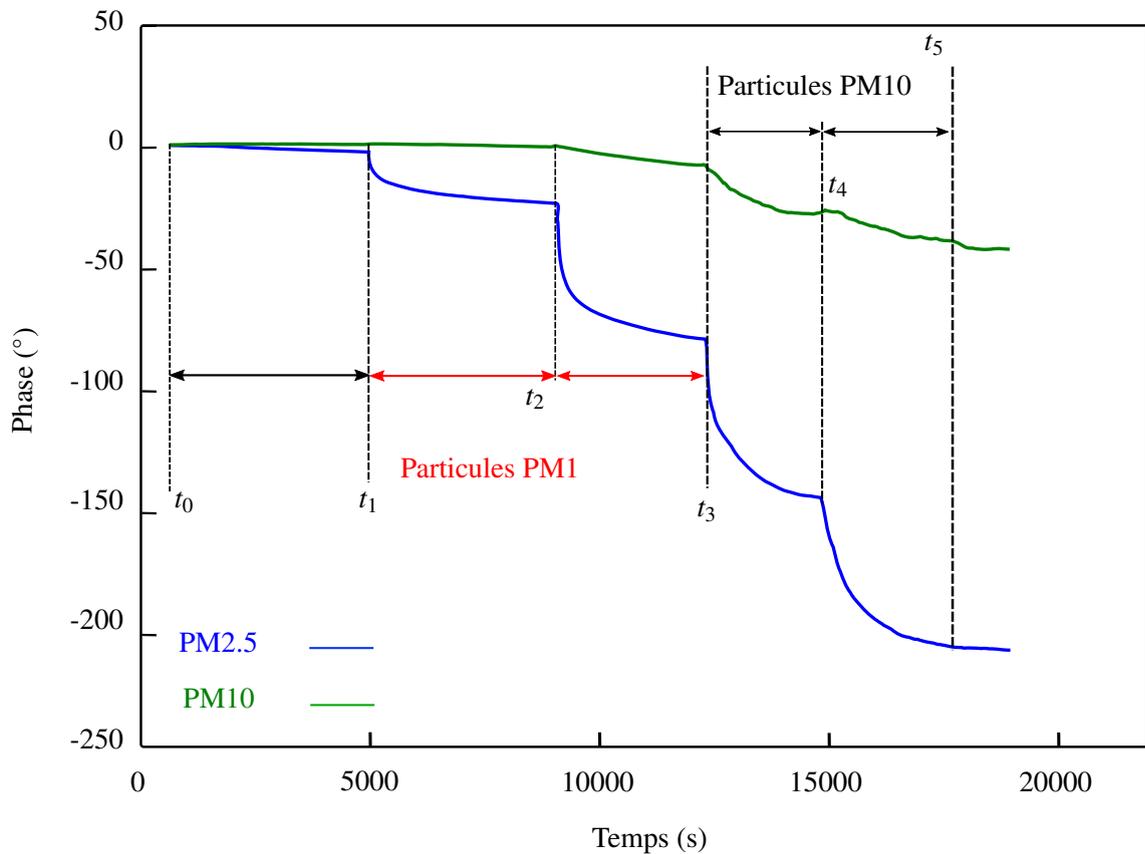


FIGURE 4.2 – Évolution des phases différentielles des capteurs SAW au niveau des étages PM2,5 (en bleu) et PM10 (en vert) en présence d'injections successives de particules issues de fumée de bougie (de  $t_1$  à  $t_3$ ) et d'étain de fer à souder (de  $t_3$  à  $t_5$ ).

Cette expérience s'est déroulée en cinq étapes :

- Étape 1 ( $t < t_0$ ) :

Celle-ci correspond à la phase d'acquisition du signal du capteur avant le début du prélèvement ; la caractérisation des quatre lignes-à-retard, permettant le choix des fréquences de fonctionnement, est réalisée au préalable de la mesure. Cette étape permet de vérifier le bon fonctionnement de toutes les lignes et d'atteindre la stabilisation du signal.

- Étape 2 ( $t_0 < t < t_1$ ) :

Le système de prélèvement d'air est enclenché entraînant un flux d'air chargé en particules à très faible concentration, comprise entre 0 et  $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Ces particules proviennent de la faible contamination de la salle. Le changement brusque de température engendré par le pompage est compensé par le différentiel.

Cette étape provoque une diminution de la phase de l'étage PM2,5 indiquant une très bonne sensibilité du système contrairement à l'ePM qui ne détecte pas de si faibles concentrations. La stabilité de l'étage PM10 indique l'absence de particules dans cette gamme de taille et valide le très bon fonctionnement du système différentiel.

- Étape 3 ( $t_1 < t < t_3$ ) :

La génération des particules PM1 commence avec deux cycles successifs de particules issues de fumée de bougie. Leur concentration atteint une valeur maximale de l'ordre de  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  pour les deux cycles. Comme attendu, le capteur situé au niveau de l'étage des PM2,5 voit sa phase diminuer lors des deux cycles de génération. En revanche, la phase au niveau de l'étage PM10 reste stable, la fumée de bougie ne contenant pas de particules de diamètre supérieur à  $2,5 \mu\text{m}$ .

- Étape 4 ( $t_3 < t < t_5$ ) :

La phase de l'étage PM2,5 étant stable, deux injections successives de particules issues d'un fil d'étain de 10 cm chauffé par un fer à souder sont déclenchées. Les capteurs réagissent aussitôt par une diminution abrupte de la phase au niveau de l'étage des PM2,5. Un décalage, moins important, est observé sur l'étage des PM10. Les deux étages collectent donc bien les particules visées. La plus faible intensité du signal constatée pour les PM10, environ 10 fois inférieure à celle des PM2,5, est en accord avec les données issues de la littérature indiquant que les particules grossières ne représentent que 10% de la masse globale de l'aérosol émanant de fumée de soudure. Il est à noter également que la réponse au niveau de l'étage PM10 est légèrement bruitée. Ce phénomène sera explicité dans la suite de ce chapitre.

- Étape 5 ( $t > t_5$ ) :

Le pompage est arrêté ; le signal se stabilise lentement.

Ces résultats expérimentaux montrent que la séparation et la mesure des particules PM2,5 et PM10 est effective, et ce pour les deux natures de particules. Pour étudier la qualité de séparation des particules de manière plus approfondie, les surfaces sensibles des capteurs sont observées à l'aide d'un microscope optique équipé d'une caméra. Cette technique permet ainsi la détermination des diamètres des particules adsorbées en surface et la vérification de leur correspondance avec ceux attendus.

La figure 4.3 représente l'image de la surface du capteur situé au niveau de l'étage PM2,5 où sont collectées les particules de diamètre inférieur à  $2,5 \mu\text{m}$ . En étudiant précisément ces images, il est possible de constater que les diamètres mesurés correspondent bien à cette gamme. La légère différence de taille observée pour certaines particules s'explique facilement par le pourcentage effectif de filtration qui, pour rappel, correspond à seulement 50% de particules collectées et par la formation d'agrégats entre certaines particules au moment de l'impaction. Dans ce cas, la forme des particules ne semble plus sphérique mais allongée.

Une observation similaire de la surface du capteur positionné au niveau de l'étage PM10 (cf. figure 4.4) a été effectuée attestant de la bonne séparation ; les diamètres étant compris entre  $2,5 \mu\text{m}$  et  $10 \mu\text{m}$ . Dans ce cas, le nombre de particules adsorbées sur le capteur est nettement plus faible que celui constaté pour les PM2,5. Ceci est en accord avec la faible proportion PM2,5 et PM10 précitées.

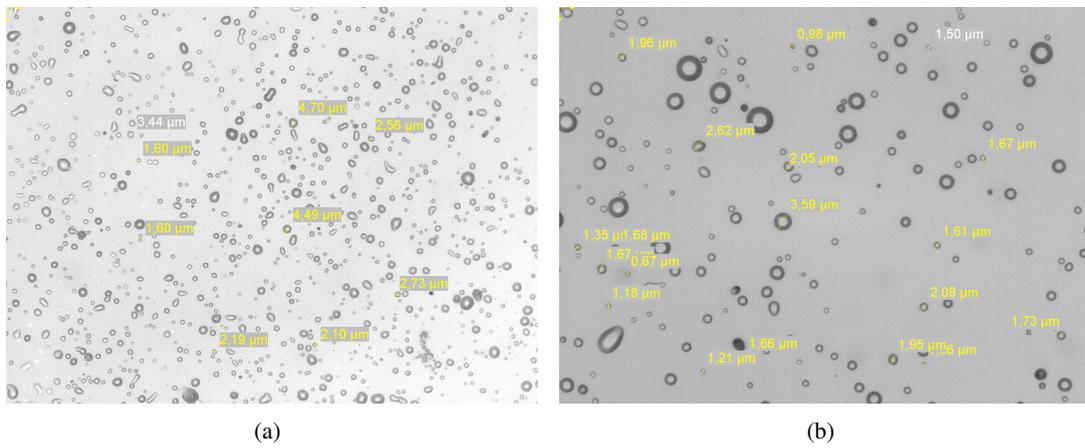


FIGURE 4.3 – Images au microscope de la surface de l'étage PM2,5 après plusieurs cycles de mesure avec un agrandissement : (a)  $\times 20$  et (b)  $\times 50$ .

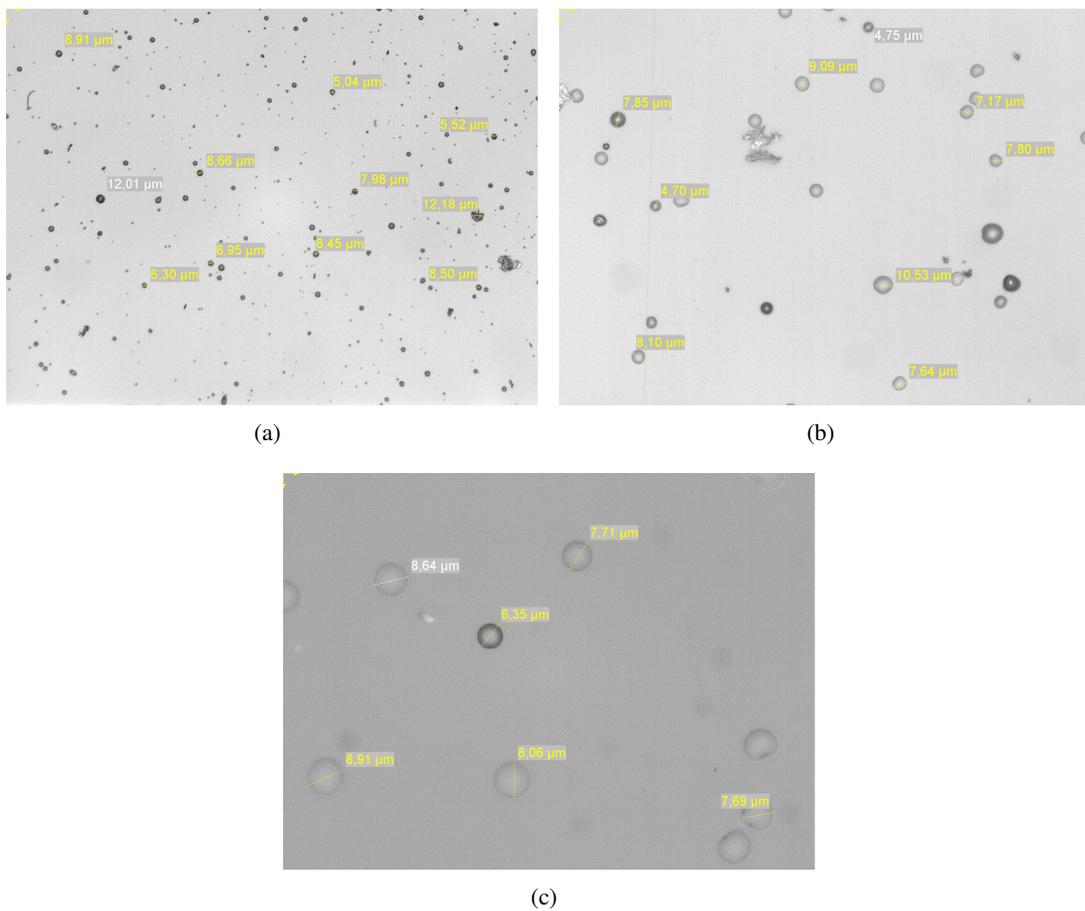


FIGURE 4.4 – Images au microscope de la surface de l'étage PM10 après plusieurs cycles de mesure avec un agrandissement : (a)  $\times 10$ , (b)  $\times 20$  et (c)  $\times 50$ .

#### 4.1.1/ CORRÉLATION PHASE/CONCENTRATION

Les expériences décrites dans la section précédente montrent que le dispositif est capable de séparer et mesurer les particules présentes dans l'air. Cela se traduit, à chaque étage, par un décalage négatif de la phase des capteurs, caractéristique d'un effet de masse. Afin de caractériser la pollution de l'air, il est donc nécessaire d'établir la relation existante entre ce décalage de phase et la concentration réelle des particules présentes dans l'aérosol.

En effet, la sensibilité gravimétrique des dispositifs à ondes élastiques est donnée par la formule de Sauerbrey présentée dans la section 2.3. Cette équation relie la variation de fréquence et la variation de masse due à la présence d'une espèce à la surface du dispositif par :

$$S = \frac{df}{f_0} \cdot \frac{A}{dm}$$

Pour les capteurs à ondes de Love recouverts d'une couche de silice, la sensibilité dépend principalement de l'épaisseur de la couche guidante ; celle-ci peut être estimée par des simulations (cf. section 2.5.2). La surface  $A$  et la fréquence de fonctionnement  $f_0$  étant constantes, la variation de masse est directement proportionnelle à la variation de fréquence. En outre, il existe une relation linéaire entre la phase et la fréquence pour les dispositifs à ondes élastiques de surface autour de la fréquence de synchronisme (cf. section 2.3.2.2). Par conséquent, la variation de la phase sera elle aussi proportionnelle à la variation de masse.

Dans le cas du système P' AIR, la masse présente sur les capteurs peut être exprimée en fonction du volume d'air échantillonné et de sa concentration en particules par :

$$m = C \times v \quad (4.1)$$

Le volume d'air échantillonné  $v$  s'exprime, quant-à-lui, comme le produit du débit  $Q$  et du temps de prélèvement  $t$ . Il en découle :

$$m = C \times Q \times t \quad (4.2)$$

Le débit de prélèvement étant maintenu à 3 Lpm durant le temps de l'échantillonnage et la concentration pouvant être considérée constante sur un temps  $dt$  très petit, la variation de masse  $dm$  peut alors être exprimée à partir de l'équation 4.2 comme étant :

$$dm = C \times Q \times dt \quad (4.3)$$

On en déduit aisément que la variation de masse par rapport au temps est proportionnelle à la concentration des particules. La variation de masse  $dm$  étant proportionnelle à la variation de phase  $d\phi$ , la relation de proportionnalité finale entre la concentration et la dérivée de la phase par rapport au temps peut être établie par :

$$C \propto \frac{d\phi}{dt} \quad (4.4)$$

La concentration des particules présentes dans l'air est donc proportionnelle à la variation de la phase par rapport au temps. Par conséquent, afin de comparer les résultats issues des signaux des capteurs avec la concentration des particules injectées et mesurée avec l'appareil de référence, il est nécessaire de calculer la **dérivée de la phase** par rapport au temps  $\frac{d\phi}{dt}$ .

L'ePM, utilisé comme référence lors de ces expériences, réalise une mesure toutes les 180 secondes alors que la carte d'interrogation des capteurs en fait une par seconde. Ainsi, pour comparer les résultats issues de ces deux systèmes, il est nécessaire de moyenniser ces données. Les moyennes glissées sont calculées numériquement sous le logiciel Octave [162] en effectuant un produit de convolution entre le signal de phase et un vecteur ligne dont tous les éléments sont des "1". Le nombre d'éléments de ce vecteur correspond à un temps d'une heure car le choix s'est fait de travailler sur des moyennes horaires. Pour étudier la corrélation entre les deux systèmes, le choix s'est porté sur la réponse obtenue à l'étage PM2,5 ; celle-ci étant environ dix fois supérieure à celle de l'étage PM10 et moins bruitée.

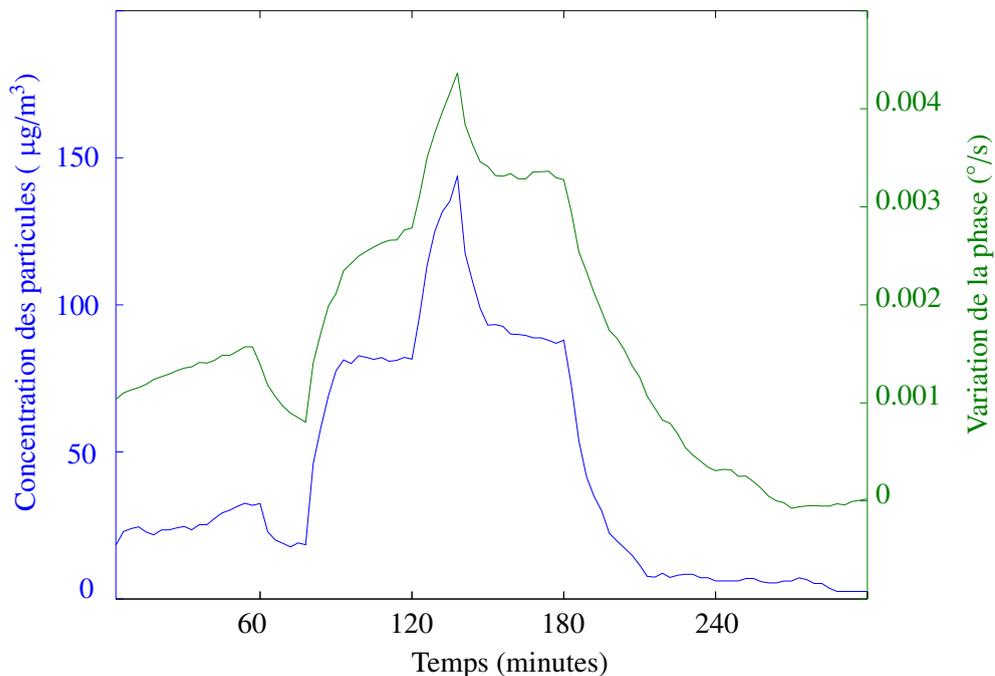


FIGURE 4.5 – Comparaison de la dérivée de la phase différentielle du capteur SAW au niveau de l'étage PM2,5 (courbe verte) avec la concentration des particules PM2,5 mesurée avec le compteur optique ePM (courbe bleue).

Dans la figure 4.5 sont représentées la dérivée de la phase différentielle du capteur SAW de l'étage PM2,5 (courbe verte) et la concentration des particules de diamètre inférieur à 2,5 µm mesurée par le compteur optique ePM (courbe bleue), ces deux courbes étant lissées par une moyenne horaire. La similitude de ces deux réponses permet de confirmer la corrélation entre la variation de phase et la concentration particulaire, comme prévu théoriquement. En effet, cette expérience prouve bien que le décalage négatif de la phase du capteur SAW est lié à un effet de masse provoqué par la présence de particules PM2,5 présentes sur sa surface.

La dérivée de la phase est alors tracée en fonction de la concentration pour étudier la linéarité entre la mesure de phase et la concentration (cf. figure 4.6). Sur cette figure, les points bleus

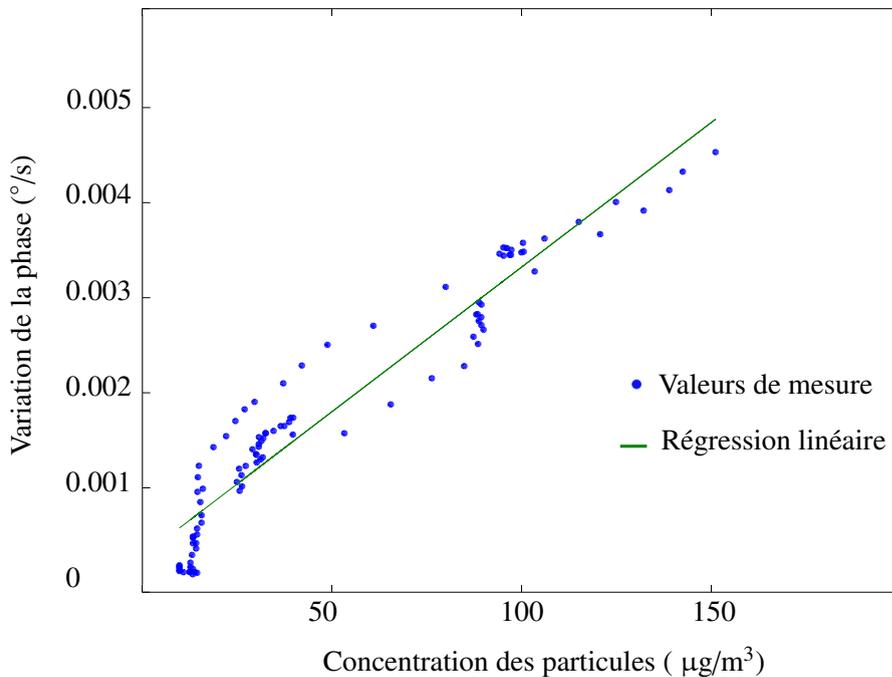


FIGURE 4.6 – Représentation de la variation de phase du capteur en fonction de la concentration des particules de diamètre supérieur à  $2,5 \mu\text{m}$  présentes dans l'air.

représentent les données de mesures prises à partir du graphe de la figure 4.5 alors que la droite en vert représente une régression linéaire obtenue par la méthode des moindres carrés. Il est possible de constater la linéarité entre les deux systèmes, la pente calculée étant de l'ordre de  $0,03 \text{ m}^\circ \cdot \text{s}^{-1} \cdot \mu\text{g}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$ .

Concernant la sensibilité du dispositif, pour une concentration de  $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  et une résolution de  $10 \text{ m}^\circ$  correspondant à notre électronique de mesure, une durée de prélèvement de 6 minutes sera nécessaire pour faire la détection. Cette concentration étant la valeur de la limite de détection demandée par le projet P'AIR.

## 4.2/ EXPÉRIENCES DANS DES CONDITIONS QUASI-RÉELLES

Le système P'AIR a pour finalité une utilisation extérieure permettant de mesurer le taux de particules provenant de la pollution atmosphérique au niveau d'une agglomération. Dans les précédentes expériences, tous les tests ont été effectués en intérieur, tout d'abord en environnement contrôlé à l'intérieur d'une enceinte VCE1000 localisée au LCE puis dans une salle d'expérience du département Temps-Fréquence au sein de l'institut FEMTO-ST, les particules utilisées provenant de fumée de bougies ou de fil d'étain chauffé par un fer à souder.

Dans cette optique, il a paru intéressant d'évaluer les performances du système P'AIR en conditions réelles. Pour cela, le dispositif a d'abord été positionné dans un parking. De la sorte, les capteurs SAW se trouvent exposés à des particules de pollution atmosphérique, ces dernières étant principalement de nature carbonée (cf. section 1.2.2), issues notamment des moteurs d'automobile. Cependant, ces expériences en extérieur n'ont pas été concluantes principalement dû au fait

de la présence du vent induisant des perturbations sur les mesures ; celles-ci étant vraisemblablement liées aux mouvements des câbles exposés en extérieur. Avant de pouvoir utiliser le système en extérieur, ce dernier devra être intégré dans un boîtier limitant le mouvement des câbles et les protégeant du vent.

Face à ces contraintes, une solution intermédiaire a été imaginée consistant à tester le système en mesurant les particules au niveau d'un garage de voitures. En effet, le garage est un bon compromis entre les mesures en intérieur et en extérieur car tout en offrant une protection contre les perturbations liées au vent, le garage a pour intérêt de fournir des particules représentatives de la pollution atmosphérique. À l'intérieur de ce garage, un camion à moteur Diesel est stationné ; celui-ci étant généralement utilisé une fois dans la matinée. Durant cette période, le moteur est mis en fonctionnement à deux reprises à l'intérieur du garage, une première fois pour sortir le véhicule du garage et une seconde pour le garer. L'idée fut donc de positionner le système P' AIR en mesure continue à l'intérieur du garage pendant la matinée. Les temps d'entrée et de sortie du camion n'étant pas connus, l'objectif est donc de déterminer la capacité ou non du dispositif P' AIR à identifier ces deux instants de courte durée.

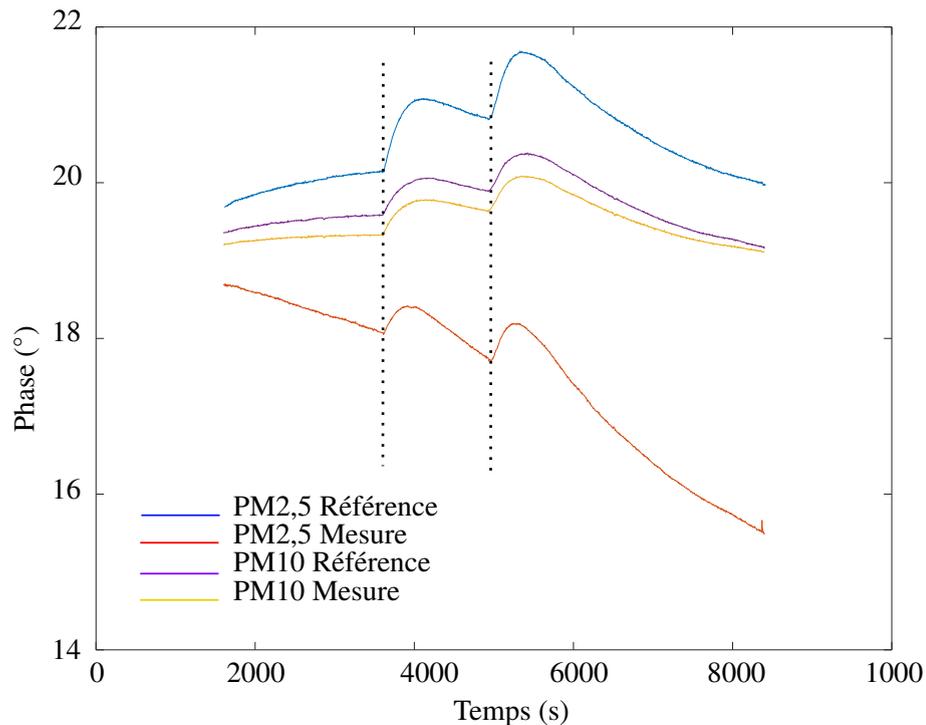


FIGURE 4.7 – Graphe de l'évolution des phases des lignes à retard des capteurs SAW au niveau des deux étages en fonction du temps avant l'application du calcul différentiel.

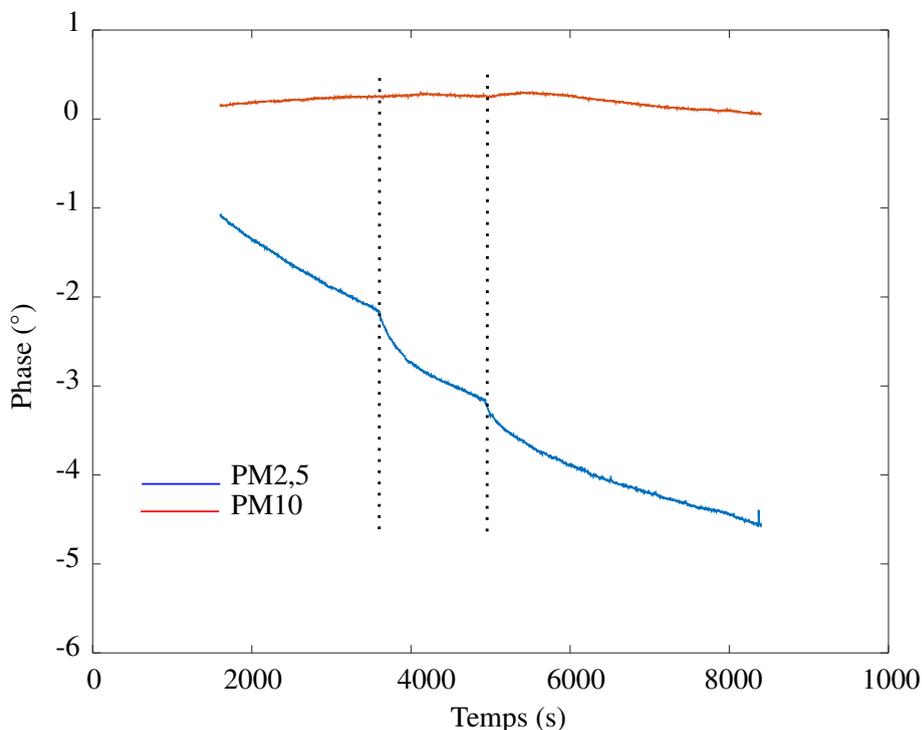


FIGURE 4.8 – Graphe de l'évolution des phases différentielles des capteurs SAW sur les deux étages PM10 (en rouge) et PM2,5 (en bleu) en fonction du temps.

La figure 4.7 présente les phases obtenues pour les quatre lignes à retard (références et mesures) au cours de l'expérience. Sur celles-ci, il est possible de distinguer les deux fois où le garage a été ouvert par le décalage des phases des quatre lignes-à-retard vers le haut, caractéristique d'un changement de température à l'intérieur du garage.

Sur la figure 4.8, le calcul différentiel est appliqué pour s'affranchir de ces variations de température. Dans ce cas, une diminution de la phase sur le capteur de l'étage PM2,5 (courbe bleue) peut être constatée. Ceci est caractéristique d'un effet de masse, preuve de la détection des particules issues du moteur du véhicule. Sur l'étage PM10, en revanche, aucune diminution n'a été observée. Après étude de la granulométrie des particules issues des rejets des véhicules, ce résultat est justifié puisque ces fumées d'échappement contiennent de manière quasi exclusive des particules de diamètre  $<1 \mu\text{m}$  (PM1) [163].

De son côté, le compteur optique utilisé comme référence dans cette expérience n'a rien vu. En effet, ce dernier se basant sur une mesure toutes les trois minutes, il n'a pas été en mesure de détecter les pics de concentration dus à la mise en route du véhicule à sa sortie puis à ce retour. Cette expérience met en évidence l'intérêt d'effectuer les mesures en continu.

Grâce à ces expériences, nous avons montré que le capteur P'AIR réagit bien aux espèces carbonées issues de moteurs Diesel. Ceci est très positif étant donné leur rôle avéré dans la pollution atmosphérique.

### 4.3/ LIMITES DU SYSTÈME

Les expériences décrites précédemment ont permis de valider le fonctionnement du système P'AIR. En effet, le dispositif est capable de mesurer les particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> via une mesure de la phase des capteurs SAW positionnés au niveau des deux étages de l'impacteur. Les diamètres des particules présentes à chaque étage ont été vérifiés et une étude de corrélation entre le signal de phase et la concentration des particules a permis la validation de la mesure. Néanmoins, le dispositif présente certaines limites, celles-ci feront l'objet de cette section.

#### 4.3.1/ PHÉNOMÈNE DE REBONDS

Le problème de rebonds est consubstantiel à l'utilisation des impacteurs en cascades ; c'est effectivement leur principale limite. En effet, la théorie des impacteurs en cascade repose sur l'adhésion des particules sur la plaque d'impaction (cf. section 3.2). Si les particules rebondissent sur la plaque, elles peuvent alors réintégrer le flux et passer à l'étage inférieur. Ce phénomène a fait l'objet de nombreuses études exhaustives depuis que les impacteurs sont utilisés de manière répandue.

##### 4.3.1.1/ MISE EN ÉVIDENCE EXPÉRIMENTALE DU PHÉNOMÈNE

Lors d'expériences complémentaires, le système P'AIR a été exposé à un nouveau type de particules, en l'occurrence du sable d'Arizona. Ces particules sont généralement utilisées comme référence pour calibrer les instruments de caractérisation des aérosols car elles couvrent la gamme comprise entre 1 à 10  $\mu\text{m}$  avec une moyenne centrée autour de 3  $\mu\text{m}$ .

Les expériences sont effectuées dans une enceinte contrôlée en température et en humidité où les particules de sable sont introduites. Après atteinte d'une concentration suffisante dans la chambre, deux cycles de pompage sont réalisés. Le premier s'effectue lorsque les concentrations PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> sont respectivement de 400 et 550  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Pour le second, les concentrations sont de l'ordre de 200 et 250  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

La figure 4.9 met en évidence la bonne réponse du capteur situé au niveau de l'étage PM<sub>2,5</sub>. Cependant, sur l'étage correspondant aux PM<sub>10</sub>, aucun décalage de phase n'est observé. Une différence entre les concentrations PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub> d'environ 150  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  est pourtant mesurée par le compteur optique lors du premier cycle de pompage et de 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  pour le second. En outre, après démontage du dispositif et observation de la surface des capteurs par microscopie, des particules sont clairement adsorbées au niveau de l'étage PM<sub>2,5</sub> alors que le niveau des PM<sub>10</sub> est quasi vierge de particules. L'explication la plus probable de l'absence de particules sur cet étage est le phénomène de rebonds. En effet, avec ces particules de sable contenant principalement de la silice, les forces d'adhésion sont plus faibles provoquant ainsi le rebond des particules et leur réintégration dans le flux. Cela est en accord avec ce qui a été présenté dans la section 1.3.3.7 précisant que les forces de détachement devenaient prédominantes devant les forces d'adhésion dans le cas des particules grossières. Ce principe expliquerait les différences obtenues au niveau des deux étages.

Afin de mieux comprendre ce phénomène de rebonds, des expériences de caractérisation de la

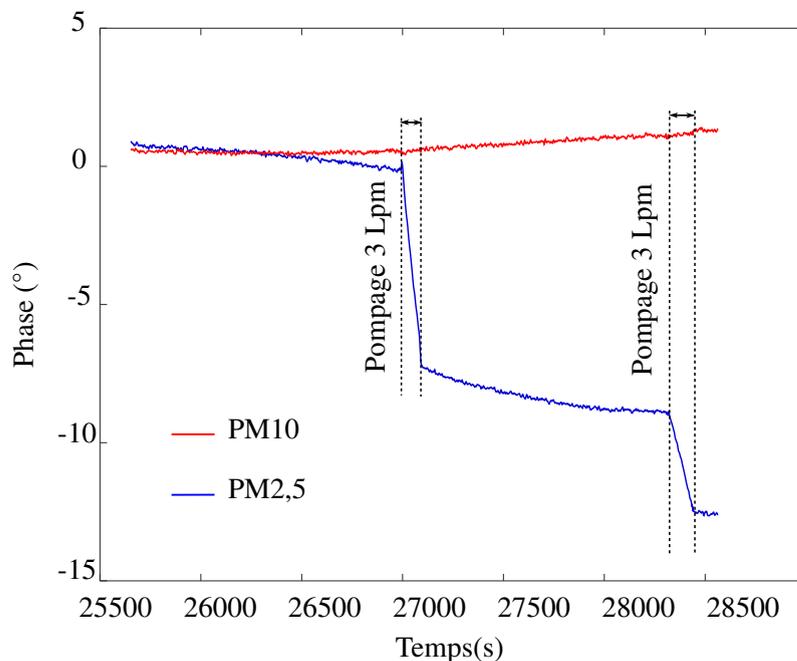


FIGURE 4.9 – Évolution des phases différentielles des étages PM2,5 (en bleu) et PM10 (en rouge) lors de deux cycles de pompage en présence de particules sable d'Arizona.

filtration par l'impacteur ont été menées au LRGP<sup>1</sup> de Nancy. Le banc de mesure utilisé (cf. figure 4.10) est composé d'un générateur de particules Palas RBG 1000 [164], une enceinte de mélange permettant d'homogénéiser la concentration des particules, un appareil de mesure Palas Inas[165] capable de renseigner sur la distribution granulométrique de l'aérosol dans la gamme 0,5  $\mu\text{m}$  à 10  $\mu\text{m}$  et d'un étage d'impacteur  $d_{50}=2,5 \mu\text{m}$  fonctionnant à 5 Lpm, ce débit étant choisi pour le bon fonctionnement du compteur optique.

Ce montage permet de déterminer la distribution granulométrique des particules injectées, ici de quartz comprise entre 0 et 10  $\mu\text{m}$ , en amont et en aval de l'impacteur. Les mesures sont systématiquement effectuées trois fois de manière à moyenner les valeurs de concentration. Les distributions granulométriques en amont et en aval sont ensuite comparées entre-elles de manière à estimer l'efficacité de la filtration.

Sur la figure 4.11, sont présentées les distributions granulométriques en amont (en bleu) et en aval (en rouge) de l'impacteur. Le chevauchement des deux distributions indique que toutes les particules ont traversé l'impacteur. Un revêtement de la plaque de collection semble nécessaire dans ce cas, l'impacteur ne remplissant pas son rôle de collection des particules. On peut donc penser que dans le cas de notre dispositif, les particules après avoir impactées sur la surface du capteur, rebondissent et réintègrent le flux d'air et passent à l'étage inférieur.

Ces expériences ont permis de mettre en évidence ce phénomène de rebond ; celui-ci étant d'autant plus important que les particules adhèrent plus faiblement sur les surfaces. De manière intuitive, il est possible de penser que le phénomène sera d'autant plus important que les particules sont

1. Laboratoire Réactions et Génie des Procédés

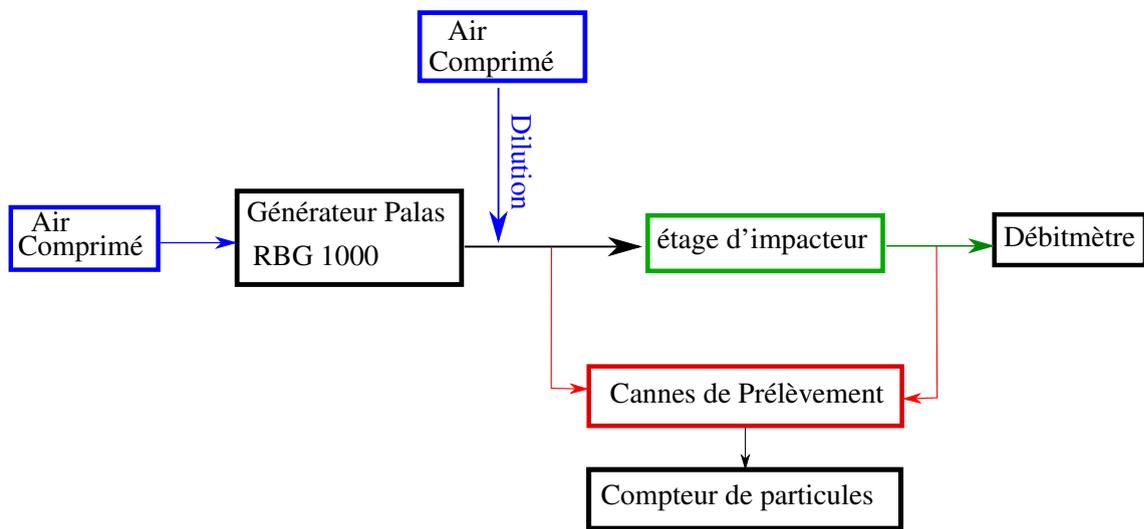
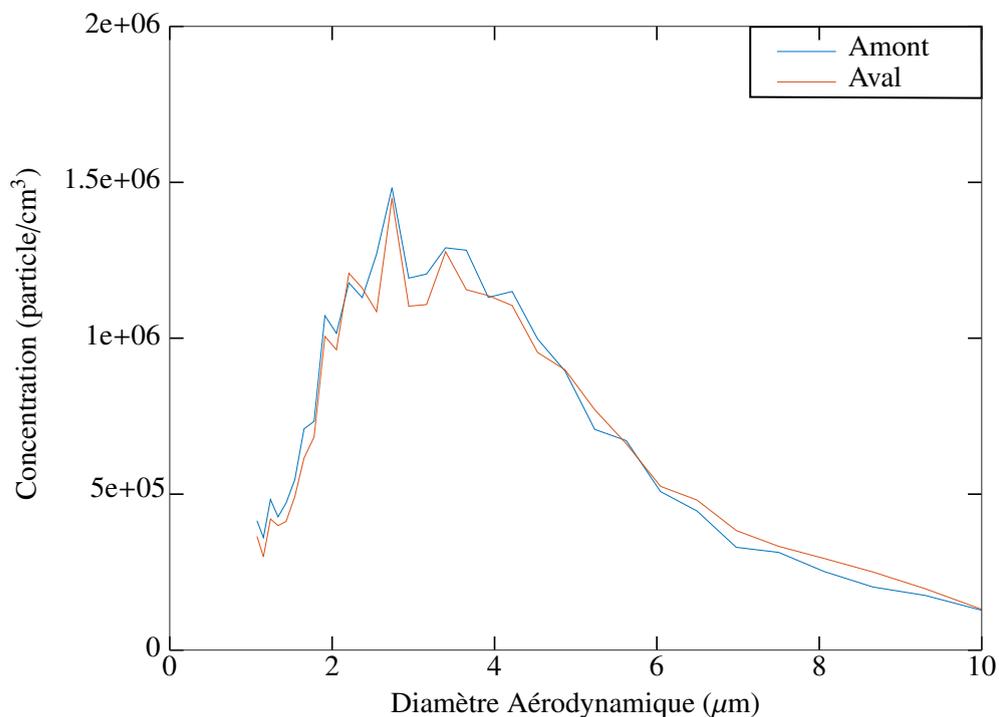


FIGURE 4.10 – Banc expérimental de génération de particules du LRGP à Nancy

FIGURE 4.11 – Distribution granulométrique de particules de quartz avant et après filtration par un étage d'impaction  $d_{50}=2,5 \mu\text{m}$  mettant en évidence le phénomène de rebonds avec une filtration quasi inexistante.

rigides ; les particules molles, plus ou moins visqueuses, ayant tendance à se coller aux surfaces. Il est important de rappeler que les particules de diamètre aérodynamique plus important seront plus enclin à ce phénomène que les particules fines. En effet, comme développé dans le premier chapitre de ce document, les forces d'adhésion (Van der Waals) sont proportionnelles au diamètre des particules (cf. section 1.3.2), alors que les forces de friction sont proportionnelles au diamètre au carré (cf. section 1.3.3.4). Les forces inertielles, pour leur part, qu'elles soient gravitationnelles

ou de centrifugation, sont proportionnelles au diamètre des particules au cube (cf. section 1.3.3.5). Pour cette raison, les particules fines jusqu'à 1  $\mu\text{m}$  auront tendance à se coller facilement aux différentes surfaces alors que les particules de diamètre supérieur auront tendance à rebondir. Cette réflexion est en accord avec les expériences présentées dans la section précédente puisque l'effet de rebond n'a été rencontré qu'à l'étage des particules comprises entre 2,5  $\mu\text{m}$  et 10  $\mu\text{m}$ .

#### 4.3.1.2/ COUCHE ANTI-REBOND

Afin de corriger le problème pré-cité, une couche de lubrifiant en silicone a été déposée par spray sur la surface sensible des capteurs. Cette couche a pour objectif d'amortir le choc des particules de sable d'Arizona lors de leur impaction sur les capteurs. Afin de créer une différence de concentration entre les particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> la plus grande possible, les particules sont injectées en quantités importantes (concentration de l'ordre de 500  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). La réponse différentielle des capteurs recouverts d'une couche amortissante au niveau des deux étages est présentée sur la figure 4.12. Après trois cycles de pompage de 120 secondes chacun, il est possible de constater que la phase des capteurs diminue nettement en présence des particules, et ce sur les deux étages ; avec toutefois une réponse plus importante au niveau de l'étage PM<sub>2,5</sub>.

Ces résultats montrent qu'il a été possible, dans ce cas, de faire la détection des particules sur les deux étages. La couche de lubrifiant a donc permis d'arrêter les particules grossières au niveau de l'étage PM<sub>10</sub> permettant au système de séparer les particules de sable selon leur taille. L'absence de réponse sur l'étage PM<sub>10</sub> observée lors des précédentes expériences (cf. figure 4.9) semble bien être due au phénomène de rebonds, celui-ci ayant été réduit grâce à la couche de lubrifiant déposée.

Néanmoins, le comportement observé n'est pas constant pendant la totalité du pompage. En effet, après un décalage négatif abrupte de la phase des capteurs constaté au cours des trente premières secondes de prélèvement, le signal se trouve alors perturbé et peut légèrement augmenter. Plusieurs hypothèses peuvent être émises pour expliquer ce comportement. Notamment que la couche de lubrifiant n'adhère pas suffisamment à la surface et qu'elle la quitte progressivement lors du pompage provoquant ainsi une modification des conditions de propagation de l'onde élastique. Par conséquent, cette solution ne peut être utilisée que provisoirement. D'où la nécessité d'identifier une couche à déposer sur la surface des capteurs qui soit stable, homogène et répétable. Après études bibliographiques, il en ressort que les revêtements les plus courants sont composés de graisses ou de membranes de filtre [56]. Dans notre cas, les plaques d'impaction étant les capteurs, le choix du revêtement est plus délicat. En effet, en fonction de sa nature et de son épaisseur, il peut entraîner des pertes acoustiques importantes rendant alors la mesure difficile voire impossible. En revanche, une couche trop fine peut limiter l'effet-anti rebond recherché.

Un des matériaux très utilisés et donnant de bons résultats en tant qu'amortissant est le PTFE<sup>2</sup> (Teflon®) [56], [146]. Celui-ci semble donc capable de réduire les rebonds des particules sur la surface sans être collant du fait de ses propriétés hydrophobes. Cette dernière caractéristique peut s'avérer très importante dans le cas de la régénération des capteurs. Ce point sera abordé à la fin de ce chapitre. Pour ces deux raisons, le choix s'est porté sur ce matériau pour la conception de la

---

2. Polytetrafluoroethylene

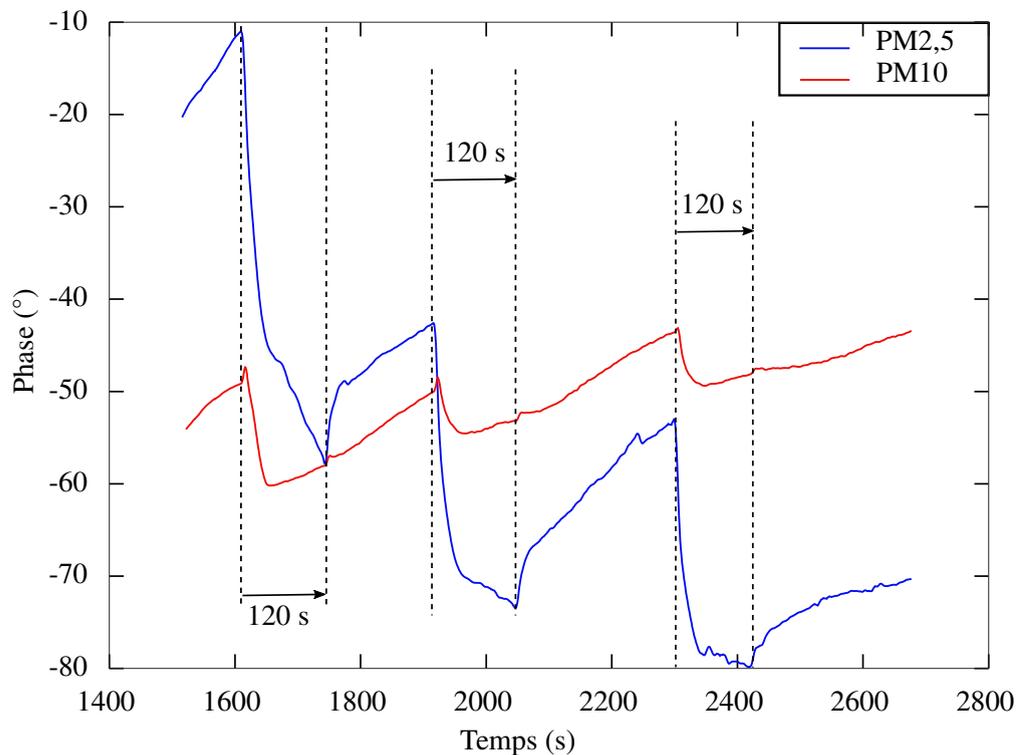


FIGURE 4.12 – Évolution des phases différentielles des capteurs SAW recouverts de silicone au niveau des étages PM2,5 et PM10 lors de 3 cycles de pompage successifs en présence de particules de sable d'Arizona.

couche anti-rebond.

La couche additionnelle de Teflon® doit être à la fois homogène et d'épaisseur maîtrisée. Pour cela, un procédé de dépôt dédié a dû être développé. Pour ce faire, une machine de gravure profonde DRIE a été détournée de sa fonction d'origine pour permettre le dépôt de PTFE à travers un plasma  $C_4F_8$  [166]. Avec ce procédé, il est possible de déposer une couche homogène d'une épaisseur de 1.5  $\mu\text{m}$  maximum. Au delà, l'homogénéité se dégrade significativement et le dépôt n'est plus aussi bien maîtrisé. Lors du dépôt, les peignes interdigités ont été recouverts de résine de manière à ne recouvrir que la partie sensible du capteur ; la résine étant ensuite enlevée dans un bain de solvant. Ainsi, plusieurs épaisseurs de Teflon ont été testées, celles-ci étant comprises entre 200 nm et 1,5  $\mu\text{m}$ .

épaisseur de couche PTFE	Pertes d'insertion
1.5 $\mu\text{m}$	50 dB
1 $\mu\text{m}$	40 dB
600 $\mu\text{m}$	30 dB
400 nm	27 dB
200 nm	25 dB

TABLE 4.1 – Pertes d'insertion mesurées en fonction de l'épaisseur de couche de PTFE déposée sur l'ensemble du dispositif SAW.

L'exploitation des signaux de phase des capteurs obtenus avec notre électronique d'interrogation

nécessite des pertes d'insertion totales ne dépassant pas 30 dB ; 35 dB étant la valeur limite acceptable. Ainsi, d'après le tableau 4.1, les pertes obtenues pour les dépôts de 1.5  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$  ne permettent pas d'effectuer une mesure. En revanche, pour les dépôts de PTFE d'épaisseur comprise entre 200 nm et 600 nm, celles-ci sont acceptables. Les épaisseurs retenues pour ce revêtement sont donc inférieures à 600 nm. Dans un premier temps, les capteurs recouverts de PTFE ont été testés en présence de particules issues de fumée de bougie afin de s'assurer de leur sensibilité vis-à-vis de ces particules. La variation de phase des capteurs recouvert d'une couche de 600 nm de PTFE avec une concentration de particules mesurée avec l'ePM est présentée sur la figure 4.13. Celle-ci montre que la réponse des capteurs recouverts de Teflon est du même ordre de grandeur que celle des capteurs sans couche additionnelle. La réponse bruitée de la mesure à l'ePM (courbe bleue) est due à la faible quantité de particules injectée (concentration inférieure à 40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) mettant en évidence les limites de cet appareil.

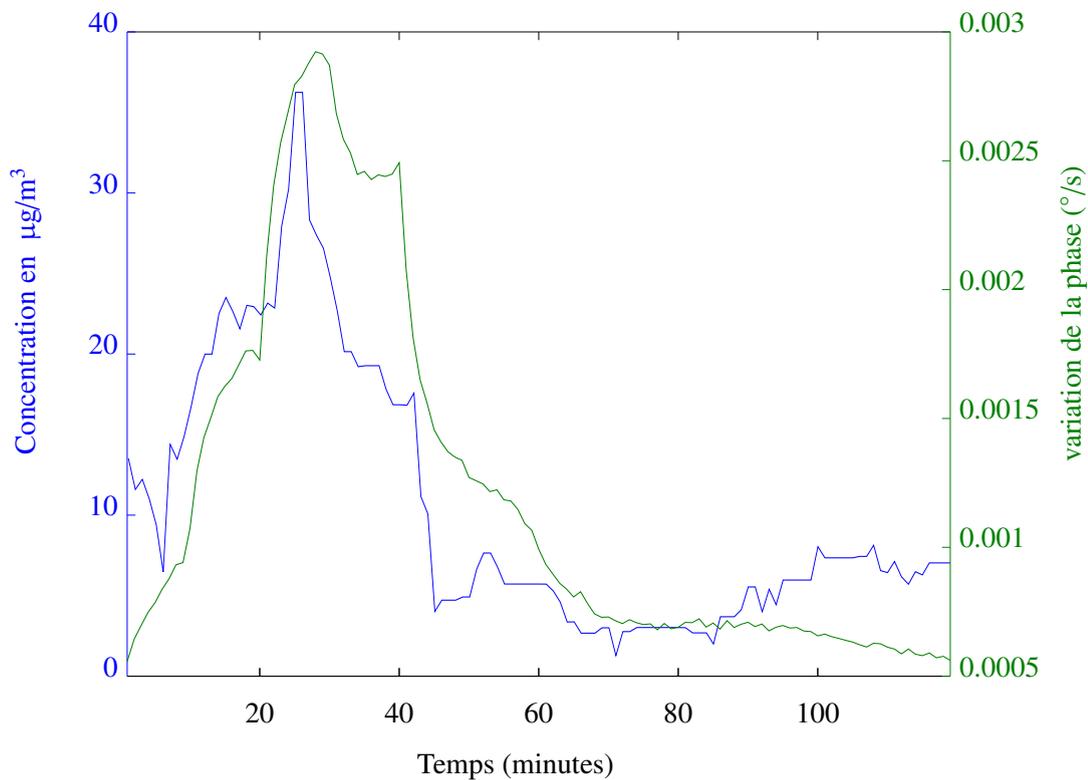


FIGURE 4.13 – Comparaison de la dérivée de la phase différentielle du capteur SAW au niveau de l'étage PM<sub>2,5</sub> recouvert d'une couche anti rebond en PTFE de 600 nm d'épaisseur avec la concentration des particules PM<sub>2,5</sub> mesurée avec le compteur optique ePM.

L'efficacité de cette couche de Teflon, en tant que couche anti-rebond pour les particules grossières, doit encore être testée. Les problèmes de maintenance et de disponibilité de la machine DRIE localisée dans la centrale technologique de MIMENTO n'ont pas permis de fabriquer de nouveaux dispositifs nécessaires à cette validation. En revanche, des tests sont d'ores et déjà programmés et seront faits prochainement.

## 4.3.2/ L'INFLUENCE DE LA TAILLE DES PARTICULES SUR LA RÉPONSE DES CAPTEURS

Dans la section 4.1, la faible réponse et l'instabilité du signal observées au niveau de l'étage des PM10 ont été soulevées. Dans le cas des particules issues de fumée d'étain, cette observation s'expliquait par la relative faible quantité de particules grossières en comparaison avec les particules fines (cf. figure 4.4). Afin de mieux comprendre l'influence de la taille des particules, d'autres expériences ont été menées en utilisant des particules de plâtre, présentant un ratio plus équilibré entre particules grossières et particules fines.

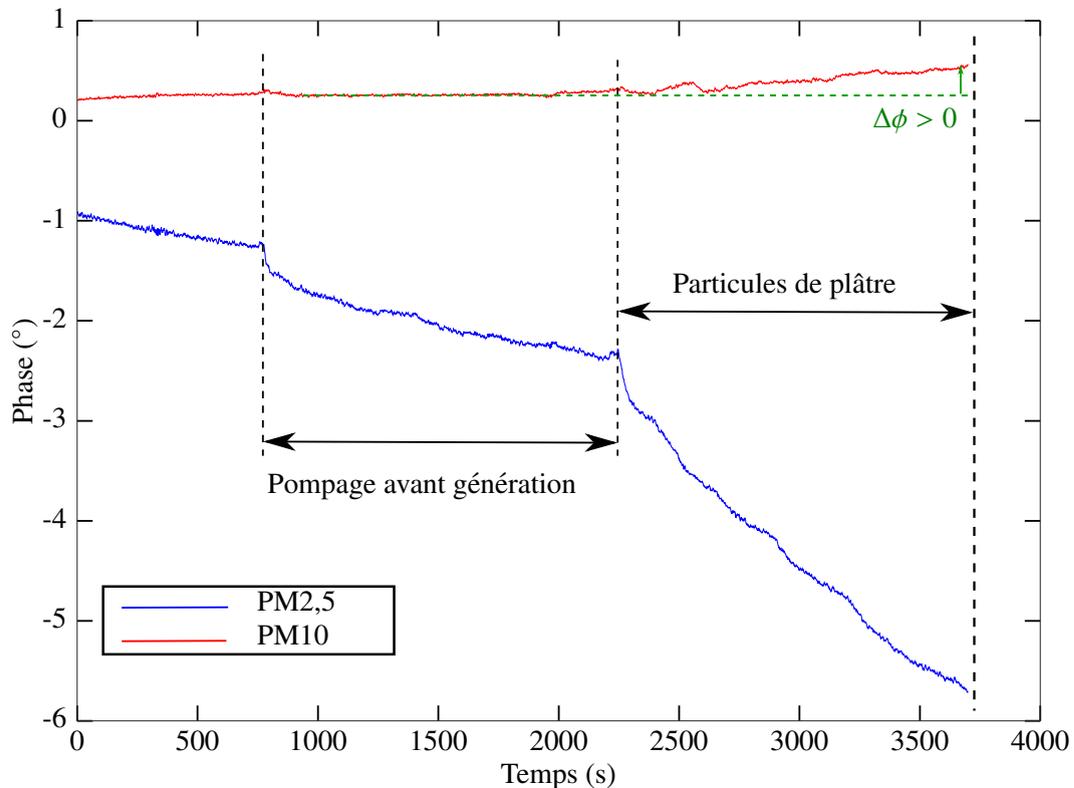


FIGURE 4.14 – Évolution des phases différentielles de capteurs SAW, recouverts de 600 nm de Teflon, au niveau des étages PM2,5 (en bleu) et PM10 (en rouge) en présence de particules de plâtre.

Les résultats de ces tests sont présentés dans la figure 4.14. Dès le début du pompage, une diminution de phase au niveau de l'étage PM2,5 est constatée, vraisemblablement due à la présence des particules fines dans la salle d'expérience. Après injection des particules de plâtre, le capteur de l'étage PM2,5 voit sa phase descendre de manière marquée, traduisant une augmentation de concentration de particules fines. L'étage PM10 quant à lui, voit sa phase augmenter. Ce comportement est classiquement observé dans le cas d'une modification des propriétés élastiques de la surface du capteur. Pour comprendre l'origine de ce résultat, une caractérisation au microscope optique a été effectuée. Celle-ci montre que les particules ont bien été collectées sur la surface des capteurs, et ce, au niveau des deux étages. L'expérience a été répétée plusieurs fois avec le même constat au niveau des deux étages : un ralentissement de l'onde (effet gravimétrique) pour les particules fines et une accélération de l'onde (effet élastique) pour les particules grossières. Pour expliquer la réponse des capteurs SAW en présence de particules grossières, nous nous sommes

intéressés aux phénomènes d'interaction entre les particules et l'onde de surface.

G. L. Dybwad relate cet effet dans un article publié dans "Journal of Applied Physics" [167]. Son étude porte sur le couplage entre des particules sphériques d'or de diamètre compris entre 10 et 50  $\mu\text{m}$  et une microbalance à quartz (QCM) fonctionnant à 1 MHz. Pour caractériser ce couplage, un suivi de la fréquence de résonance est réalisé durant l'expérience. Celui-ci indique une augmentation de la fréquence de la QCM en présence des particules au lieu d'une diminution caractéristique d'un effet de masse attendu classiquement [167]. Pour expliquer ce phénomène, le dispositif QCM/particule a été modélisé par deux systèmes masse/ressort couplés (cf. figure 4.15) :

- La QCM est modélisée par système oscillant de masse  $M$  et un ressort de raideur  $K$  résonant à une fréquence  $\omega_0 = \sqrt{\frac{K}{M}}$ .
- La particule a elle aussi été modélisée par un système oscillant de masse  $m$  et un ressort de raideur  $k$ . Ce dernier correspondant au paramètre d'attachement relié au couplage entre la particule et la balance à quartz.

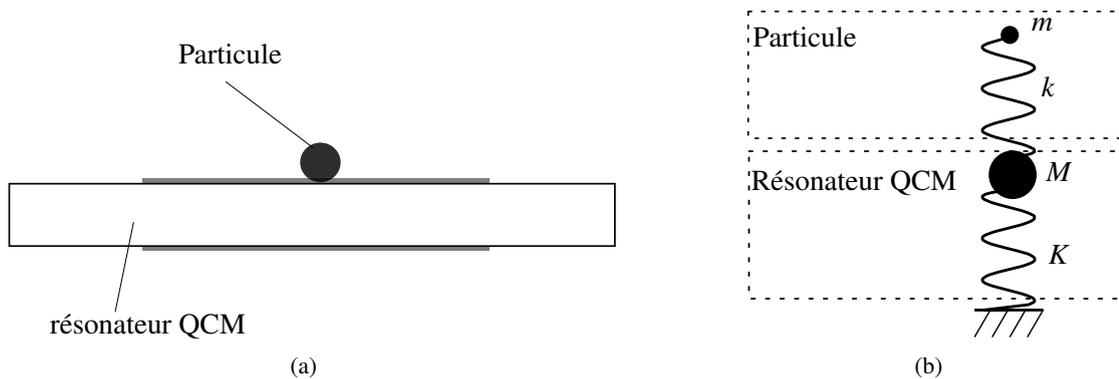


FIGURE 4.15 – Modélisation d'un système constitué d'un résonateur QCM et d'une particule déposée à sa surface [167].

La fréquence globale du système couplé peut être exprimée par l'équation 4.5 liant la fréquence de résonance du système QCM/particule au paramètre d'attachement  $k$  (cf. figure 4.16).

$$2\omega^2 = \left(\frac{K}{M} + \frac{k}{M} + \frac{k}{m}\right) \pm \sqrt{\left(\frac{K}{M} + \frac{k}{M} + \frac{k}{m}\right)^2 - 4 \cdot \frac{K}{M} \frac{k}{m}} \quad [167] \quad (4.5)$$

Le comportement du système se décompose ainsi en deux zones. Dans le cas où la particule adhère fortement à la micro balance, c'est-à-dire quand  $k$  est très grand, la particule suit alors le mouvement vibratoire du résonateur. Le système obtenu résonnera alors à fréquence  $\omega = \sqrt{\frac{K}{M+m}}$  caractéristique d'un effet gravimétrique. En revanche lorsque  $k$  est plus petit, c'est à dire lorsque la particule est faiblement couplée au résonateur, la particule ne suit plus le mouvement vibratoire de ce dernier. La présence de la particule sur la surface entraîne alors une **augmentation de la fréquence** jusqu'à atteindre une valeur maximale obtenue quand  $k = m \cdot \omega_0^2$ , correspondant au moment où la fréquence de résonance de la particule est proche de celle du résonateur.

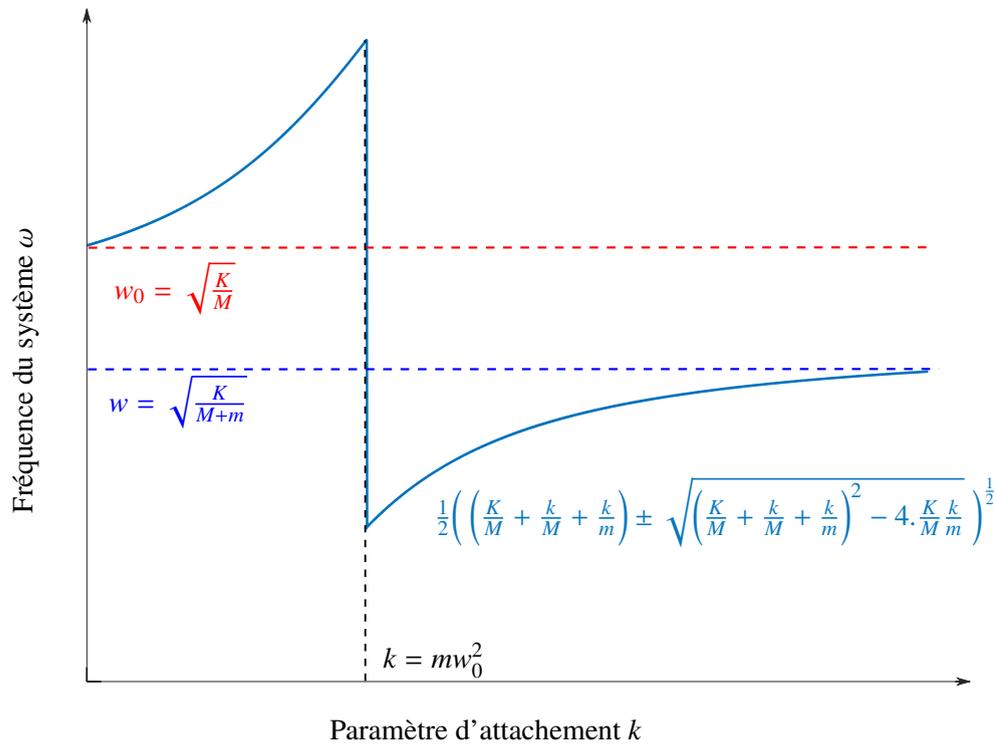


FIGURE 4.16 – Représentation de la fréquence d’oscillation d’un système QCM / particule en fonction du paramètre d’attachement [167].

Dans une étude sur les micro-contacts mécaniques, Vittorias et al. [168] ont prolongé le raisonnement en étudiant l’influence de microparticules de borosilicate sur un résonateur à quartz fonctionnant à 6 MHz. Dans cette étude, les auteurs montrent que les particules de diamètre compris entre 10  $\mu\text{m}$  et 20  $\mu\text{m}$  induisent une augmentation de la fréquence du dispositif acoustique. En effet, en raison du faible couplage entre les particules et le résonateur, celles-ci n’arrivent pas à suivre l’oscillation du résonateur et entraînant une augmentation de la rigidité du système d’où résulte une augmentation de la fréquence de résonance. Les auteurs montrent également que les particules de 5  $\mu\text{m}$  de diamètre induisent, quant à elle, un effet de masse caractérisé par une diminution de la fréquence de résonance. Dans la même étude, les auteurs ont réussi, à améliorer le couplage entre la surface et les particules par l’intermédiaire d’un dépôt sur la surface du résonateur d’une couche de polystyrène chauffé à 150°C. Ils ont ainsi pu obtenir un effet de masse même avec les particules de 20  $\mu\text{m}$  de diamètre.

Pour conclure, nous avons constaté par l’intermédiaire de diverses expériences et au travers des études bibliographiques que l’hypothèse de départ, formulée dans la section 2.4.1 pour laquelle les particules formeraient une couche ne provoquant qu’un effet purement gravimétrique, n’est pas systématiquement vérifiée. Cela est d’autant plus marqué en présence de particules grossières ; celles-ci occasionnant une mauvaise adhésion à la surface se traduisant par un faible couplage surface/particules. Les phénomènes mis en jeu sont très complexes et nécessitent une étude plus approfondie, d’autant plus que la nature des particules issues de la pollution est inconnue et diverse. De nouvelles expériences seront prévues prochainement de manière à caractériser plus précisément l’influence de la taille et de la nature des particules sur leur adhésion à la surface sensible des

capteurs SAW. En outre, pour réaliser cette caractérisation, il est indispensable d'avoir accès à un banc de mesure calibré mettant en jeu des particules de taille connue, mono-dispersées et de concentration maîtrisée. Dans ce but, une recherche de financement permettant la réalisation de ce banc au sein du département Temps-Fréquence de l'institut FEMTO-ST a été engagée.

#### 4.3.3/ SATURATION ET RÉGÉNÉRATION

Le principe de mesure du dispositif étant basé sur l'effet gravimétrique qu'exercent les particules à la surface des capteurs, celles-ci doivent être présentes sur la surface et y rester pour être mesurées. Lors de l'utilisation prolongée du dispositif, celui-ci risque alors de s'encrasser entraînant une baisse de sensibilité pouvant aller jusqu'à sa saturation complète. En effet, l'effet gravimétrique se traduit par un décalage vers les basses fréquences mais aussi par un dumping de l'amplitude du paramètre de transmission  $S_{21}$ . L'augmentation de la masse induisant des pertes croissantes, la dynamique du signal finira par être trop faible pour permettre l'interrogation du dispositif.

Pour le montrer, une étude théorique a été effectuée. Pour cela, un empilement de couches est simulé à l'aide d'outils de calculs développés au sein de l'équipe CoSyMA. Cet empilement est composé d'un substrat semi infini de quartz de coupe AT, d'une couche guidante en silice de 800 nm d'épaisseur et d'une couche d'or utilisée pour simuler une masse. La figure 4.17 montre l'effet de l'épaisseur de cette couche d'or sur la vitesse de phase de l'onde de Love. Celle-ci diminue brusquement pour des épaisseurs inférieures à 1  $\mu\text{m}$  puis s'amenuise progressivement jusqu'à atteindre une asymptote. À partir de la courbe de vitesse, il est possible de calculer la sensibilité gravimétrique en appliquant l'équation 4.6 :

$$S = \frac{\Delta v}{v} \cdot \frac{1}{\rho \Delta e}, \quad (4.6)$$

$\Delta e$  étant la variation de l'épaisseur de la couche d'or et  $\rho = 19,32 \text{ g/cm}^3$  sa densité. La sensibilité gravimétrique atteint son maximum pour une épaisseur d'or d'environ 0,5  $\mu\text{m}$  se poursuivant par une décroissance rapide jusqu'à la saturation complète (cf. figure 4.18).

Ces résultats prouvent qu'au delà d'une certaine quantité de matière déposée en surface des capteurs, ceux-ci ne sont plus sensibles à l'augmentation de masse à leur surface. Définir de manière précise cette quantité à partir de laquelle le capteur est saturé est difficile dans notre cas. En effet, celle-ci est fonction de l'utilisation finale du dispositif, de la nature des particules mesurées et donc de leurs caractéristiques physiques, sont indéfinies. Les constantes physiques de la couche servant à simuler l'augmentation de masse ne sont donc pas accessibles et rendent la simulation précise de cet effet impossible.

Pour cette raison, il semble plus judicieux de prévoir un système de régénération des capteurs en éliminant les particules de la surface. Celui-ci pourrait avoir lieu régulièrement, c'est-à-dire après un certain nombre de cycles de mesure ou bien après atteinte d'une valeur de variation de phase prédéfinie.

Dans ce cadre là, plusieurs solutions, ne nécessitant pas le démontage du dispositif, ont été envisagées. La première serait d'utiliser un flux d'air propre suffisamment puissant pour décoller les particules de la surface des capteurs. Cependant, cette méthode ne serait efficace que pour

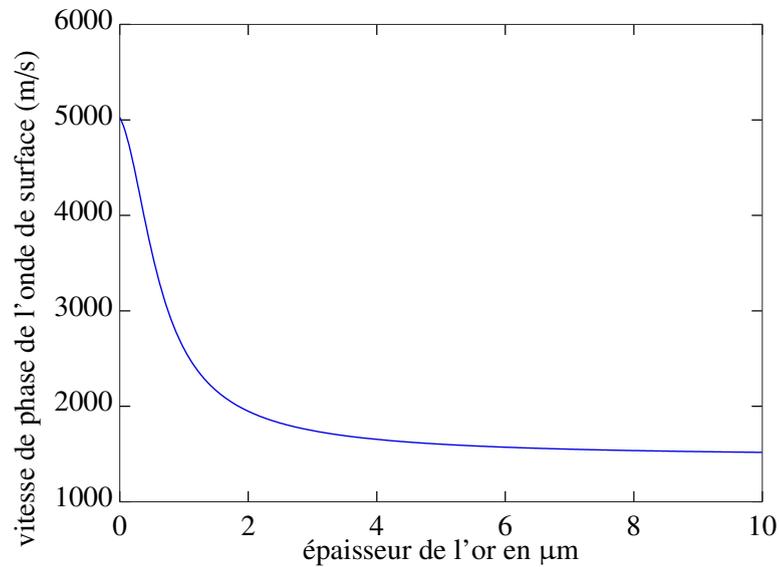


FIGURE 4.17 – Évolution théorique de la vitesse de phase l'onde de Love en fonction l'épaisseur de la couche d'or.

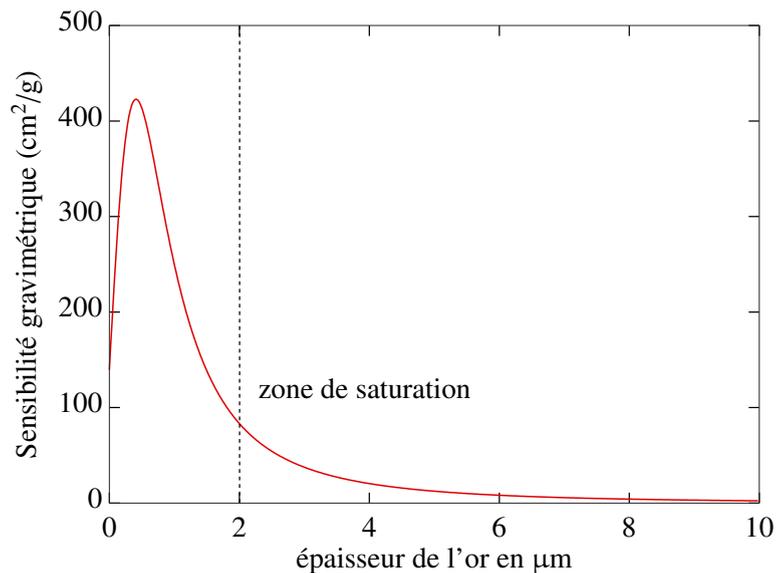


FIGURE 4.18 – Évolution théorique de la sensibilité gravimétrique du capteur SAW en fonction l'épaisseur de la couche d'or.

les particules grossières. En effet, la prédominance des forces d'adhésion (Van Der Waals, électrostatique ...) sur les forces de friction engendrées par le flux d'air empêchera le décollement des particules fines et ultra-fines. La deuxième option envisagée est d'utiliser des transducteurs à peignes interdigités permettant de générer une onde de Rayleigh perpendiculaire au chemin de propagation de l'onde de Love du capteur SAW. Cette technique a, en effet, été utilisée dans le cadre des travaux de thèse de Sébastien Alzuaga réalisée au sein de l'équipe CoSyMA, pour déplacer une goutte d'eau [169]. Le point limitant de cette méthode est sans doute le faible couplage électromécanique du quartz. La troisième solution, dont le principe est proche de la précédente

mais offrant potentiellement plus de puissance, serait d'utiliser une pastille piézoélectrique de PZT<sup>3</sup> permettant de faire vibrer le capteur. Ce système, associé à un flux d'air propre, permettrait d'arracher les particules de la surface des capteurs afin de les régénérer. Le même principe est utilisé pour le nettoyage automatique des lentilles d'appareils photo de haute gamme, inventée par Olympus en 2003 et utilisé dorénavant par les principaux fabricants d'appareils photo [170].

#### 4.4/ CONCLUSION

Ce dernier chapitre a été principalement consacré à la vérification expérimentale du fonctionnement du dispositif P'AIR. En effet, la capacité à mesurer la concentration des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> dans l'air par un système d'impaction équipé de capteurs SAW a été démontrée. Dans un premier temps, l'aptitude du système à discriminer les microparticules suivant leur taille a été validée par suivi de la réponse en phase des capteurs SAW et par des observations à l'aide d'un microscope optique. Une comparaison entre la réponse en phase et la concentration particulaire mesurée par un compteur optique commercialisé par Ecologicsense a ensuite été accomplie, montrant la corrélation existant entre les deux systèmes.

Dans la seconde partie de ce chapitre, les limites du dispositif ont été énoncées. Celles-ci étant liées à un degré d'adhésion variable en fonction de la taille et de la nature des particules. Deux principaux effets ont été identifiés. Tout d'abord, le phénomène de rebonds pouvant modifier l'efficacité de la filtration ainsi le manque de couplage entre les particules et la surface sensible pouvant limiter l'effet gravimétrique. Ces deux problèmes ont été soulevés et certaines solutions ont été proposées afin de les corriger.

---

3. Titano-Zirconate de Plomb

## CONCLUSION GÉNÉRALE

L'objectif de ce travail était de développer un outil de discrimination et de mesure de particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> dans l'air basé sur des capteurs à ondes élastiques. Ces travaux de thèse, financées via une bourse industrielle de type CIFRE conclue entre le laboratoire de recherche FEMTO-ST et l'entreprise Ecologicsense basée à Rousset, s'inscrivent dans le cadre du projet P'AIR. L'objectif était de développer un réseau de capteurs de particules miniaturisés, de grande sensibilité, peu consommateurs en énergie et à faible coût. Pour y parvenir, un dispositif fondé sur des capteurs à ondes élastiques de surface intégrés dans un impacteur en cascade a été conçu. Cette combinaison, originale et innovante, permet la séparation et la mesure des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> en temps réel. Celle-ci a fait l'objet d'un brevet déposé en avril 2016.

Les fondamentaux concernant les particules, les aérosols et leur caractérisation ont d'abord été étudiés dans le premier chapitre. La complexité du comportement des particules au sein d'un aérosol a été abordée. L'étude des phénomènes induits a également permis la compréhension des principes technologiques des systèmes de mesure existants, notamment optique, gravimétrique et radiométrique. Ainsi, il a pu être montré que malgré les nombreux avantages des technologies optiques, celles-ci sont peu adaptées à la mesure de la pollution atmosphérique car nécessitant une calibration pour chaque nature de particule à mesurer. De même, une étude bibliographique complète a été menée permettant d'identifier les instruments actuels capables de mesurer les particules fines dans l'atmosphère en temps réel. Malgré leurs nombreuses qualités, ces instruments ne remplissent pas les caractéristiques recherchées pour le projet P'AIR, que ce soit en termes de taille, de coût ou encore de consommation. Pour cette raison, cette thèse a investigué une autre voie qui est celle des capteurs à ondes élastiques de surface ; ce type de technologie offrant une grande sensibilité gravimétrique ainsi que d'autres avantages notamment par rapport au coût et la consommation énergétique.

La conception de ces capteurs dédiés à la détection de particules a fait l'objet du second chapitre. Pour cela, les généralités sur la propagation des ondes élastiques dans les solides et en particulier dans les cristaux piézoélectriques ont été introduites. Le choix s'est porté sur des capteurs avec une configuration de type ligne à retard permettant la propagation d'ondes de Love au sein d'une couche guidante en silice. Les différentes étapes de conception de ce type de dispositifs ont été présentées. La sensibilité de ces capteurs en présence de particules a ensuite été validée expérimentalement. À l'aide d'outils de calculs conçus au sein de l'équipe CoSyMA, permettant la modélisation du comportement de dispositifs électroacoustiques, une épaisseur de couche guidante optimale a pu être identifiée.

Les capteurs à ondes de Love n'étant pas intrinsèquement en mesure de discriminer les particules selon leur taille, un système spécifique de filtration des PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> a dû être mis au point. La conception de ce système de séparation a été l'objet du troisième chapitre. Après considération

des avantages et inconvénients des différents systèmes de filtration existants et/ou concevables, le choix s'est porté sur le principe des impacteurs en cascade. Après étude théorique et simulations numériques à l'aide du logiciel d'éléments finis Comsol Multiphysics, les différentes étapes de conception de ce système ont été validées. Pour y intégrer les capteurs SAW permettant la mesure en temps réel, des plaques d'impaction dédiées ont été conçues ; cette intégration étant un point novateur par rapport aux systèmes existants. De nombreuses modifications et optimisations ont été nécessaires avant de parvenir à un design final fonctionnel permettant la mesure des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> en temps réel.

Le quatrième et dernier chapitre a été consacré à la vérification expérimentale du bon fonctionnement de ce dispositif. Ainsi, la capacité à mesurer la concentration des particules PM<sub>2,5</sub> et PM<sub>10</sub> dans l'air par un système d'impaction équipé de capteurs SAW a été prouvée. Ces validations ont été effectuées par étapes. Tout d'abord, la discrimination par la taille a été validée par suivi de réponse en phase des capteurs SAW et observation par microscopie optique. Ensuite, la corrélation entre la réponse en phase et la concentration particulaire mesurée par un compteur optique commercialisé par Ecologicsense a été accomplie. Toutefois, les diverses expériences ont pu mettre en évidence certaines limites au système ; celles-ci étant, de toute vraisemblance, liées à une mauvaise adhérence sur la surface des capteurs de certaines particules grossières. Associés à cela, deux principaux effets ont été identifiés : tout d'abord, un phénomène de rebonds peut modifier l'efficacité de la filtration en renvoyant des particules de plus gros diamètre à un étage inférieur et ensuite, un manque de couplage entre les particules et la surface sensible peut minimiser l'effet gravimétrique attendu.

Ces dernières expériences ont toutes été effectuées à l'aide d'aérosols de concentration non maîtrisée, le banc de mesure à disposition ne permettant pas de contrôler la quantité de particules générées. En outre, celles-ci provenant de fumée de bougie ou d'étain, sont de la catégorie des aérosols poly-dispersés, c'est-à-dire que plusieurs diamètres de particules coexistent. Or les résultats obtenus montrent que la taille des particules a une forte influence sur la réponse des capteurs SAW. Il est prévu, dans le cadre de la suite de ces travaux de thèse, de développer un banc expérimental disponible au département Temps-Fréquence et capable de générer des aérosols mono-dispersés de concentrations contrôlées, ainsi que de gaz divers. Un tel banc permettra la caractérisation de dispositifs de mesure de particules ou de gaz de manière précise et rigoureuse. En outre, il est présagé de compléter les études sur l'efficacité d'une couche anti-rebond en Teflon en présence de particules de tailles et de natures différentes.

D'un point de vue théorique, le couplage entre particules et onde de surface pourra aussi faire l'objet d'une étude plus poussée, en mettant au point des modèles numériques permettant une meilleure compréhension de l'interaction de l'onde de surface avec différentes natures et tailles de particules.

En vue de la potentielle commercialisation du dispositif, il est nécessaire de connaître sa durée de vie ainsi que les éventuelles dérives dues à l'encrassement de la surface des capteurs par les particules. Cette donnée permettrait d'apporter une correction à l'éventuelle perte de linéarité en fonction du temps et d'estimer un seuil de saturation. Dans le cas où la durée de vie serait trop courte par rapport à l'application visée, un système de nettoyage in-situ pourra être mis au point. Durant cette thèse, plusieurs méthodes ont déjà été envisagées et certaines testées brièvement,

notamment l'utilisation d'ondes de Rayleigh ou la génération d'ondes de volume par une pastille de PZT. Toutefois, quelque soit le système choisi, la problématique d'intégration au niveau des différents étages sera un élément important à prendre en considération.

Tout au long de ces travaux de thèse, le système a été testé dans diverses conditions : enceinte contrôlée en température, environnement intérieur et dans un garage. La perspective de fonctionnement du système en environnement extérieur soulève de façon évidente la problématique de robustesse. Celle-ci étant en partie assurée par le système différentiel, elle n'est à ce jour pas suffisante. En effet, des expériences réalisées en présence de vent ont montré l'apparition de parasites et bruits importants pouvant dégrader la réponse du système ; la réponse en phase étant très sensible aux mouvements et vibrations des câbles coaxiaux. En prévision de cela, dans le cadre de ce projet, un boîtier spécifique a été développé par Ecologicsense, celui-ci n'a pas encore pu être testé en conditions réelles par manque de temps.

En outre, en vue de la mise en place d'un réseau de capteurs autonomes, la minimisation de la consommation en énergie peut être encore envisagée ainsi que la réduction du coût de fabrication de l'impacteur. En effet, la diminution du débit de fonctionnement de l'impacteur de 3 Lpm à 1 Lpm, ou moins, paraît digne d'intérêt. Ainsi, une étude ayant pour but de descendre à 0,5 Lpm a déjà été entamée. Par ailleurs, le remplacement de certaines parties initialement prévues en aluminium par un polymère thermoplastique comme l'ABS (acrylonitrile butadiène styrène) via de l'impression 3D peut être une solution économiquement intéressante. Un prototype a déjà été fabriqué en collaboration avec Ecologicsense et est actuellement en phase de test. Le gain estimé de réduction de coût serait d'au moins un facteur trois.

Enfin, pour la suite de ces travaux de thèse et au vu des résultats très encourageants de celle-ci, l'équipe CoSyMA souhaite continuer sur cette thématique en proposant un projet ayant pour but d'améliorer le dispositif P'AIR en y ajoutant un étage supplémentaire permettant la mesure des particules plus fines, tout d'abord les PM1 pour tenter finalement la mesure des nanoparticules.



## TABLE DES FIGURES

1.1	Distribution normale (a) et logarithmique (b). . . . .	10
1.2	Cartographie de la moyenne annuelle de pollution particulaire (PM10) de la ville de Marseille [26]. . . . .	11
1.3	Source de particules PM10 (a) et PM2,5 (b) émises dans la région Provence-Alpes-Côte-d'Azur lors de l'année 2013 mesurées par Air PACA®[27]. . . . .	11
1.4	Composition des particules PM2,5 prélevées dans les zones de trafic en région parisienne [24]. . . . .	11
1.5	(a) : régime laminaire ou écoulement de Poiseuille. (b) : régime turbulent. . . . .	14
1.6	Schéma représentatif de la force Van der Waals. (a) : formation d'agrégats lors de l'interaction de deux particules, (b) : collage d'une particule à une surface. . . . .	16
1.7	Représentation schématique de la force électrostatique entre deux particules chargées. . . . .	17
1.8	Représentation schématique de la force électrostatique entre une particule et une surface chargées. . . . .	17
1.9	Représentation schématique de la force d'image électrostatique entre une particule chargée et une surface non-chargée. . . . .	18
1.10	Vitesse terminale de chute d'une particule dans l'air soumise à la force gravitationnelle. . . . .	21
1.11	Représentation schématique de la force de centrifugation . . . . .	22
1.12	Zones d'influence des forces sur la dynamique des particules selon leur taille. . . . .	23
1.13	Comparaison entre le diamètre aérodynamique, le diamètre de Stokes et la taille réelle d'une particule. . . . .	25
1.14	Images des différents types de filtres : (a) filtre à fibres, (b) filtre à membrane et (c) filtre à pores capillaires. . . . .	28
1.15	Définition du diamètre de coupure des classificateurs inertiels. . . . .	29
1.16	Principe de fonctionnement des impacteurs en cascade. . . . .	30
1.17	Schéma de principe d'un cyclone. . . . .	31
1.18	Représentation schématique d'une jauge $\beta$ . . . . .	32
1.19	Schéma général du principe d'échantillonnage d'un aérosol. . . . .	33

1.20	Image d'un TEOM développé par la société américaine Thermo Fisher Scientific®.	35
1.21	Image d'un compteur optique Grimm ENVIRO-11E [70]	37
1.22	(a) Impacteur PM10 basique de Dekati® [71], (b) Impacteur Dekati® DLPI®+[72]	38
1.23	Impacteur électrique ELPI®+[73]	38
1.24	Model PC-2H Real-Time Air Particle Analyzer	39
2.1	Schéma représentatif d'une onde plane harmonique	45
2.2	Représentation d'une onde longitudinale.	47
2.3	Représentation d'une onde transverse.	48
2.4	Schéma de réflexion/réfraction d'une onde longitudinale à l'interface entre deux milieux isotropes	48
2.5	Représentation de l'onde de Rayleigh. La direction de propagation est indiquée par la flèche alors que le déplacement ponctuel, de nature rétrograde, est représenté par l'ellipse.	49
2.6	Représentation du mouvement des particules par rapport à la direction de propagation dans le cas d'une onde de Love.	50
2.7	Représentation d'une onde de Love se propageant à l'interface entre une couche guidante et un substrat [83].	51
2.8	Schéma de principe des effets piézoélectriques directe et inverse	51
2.9	Schéma d'une microbalance à quartz (QCM)	55
2.10	Représentation de l'effet de masse dans une microbalance à quartz.	55
2.11	Schéma d'un résonateurs FBAR avec un miroir de Bragg (a) et une cavité (b) [111].	57
2.12	Schéma d'un résonateur à ondes de volume de type HBAR (à gauche). Partie réelle de l'admittance en réflexion de la structure (à droite) [114].	58
2.13	Schéma d'un IDT.	59
2.14	Représentation de la conductance $G$ permettant de déterminer la fréquence de résonance et le facteur de qualité $Q$ .	61
2.15	Schéma de principe d'un résonateur à ondes élastiques de surface.	61
2.16	Principe général des lignes à retard.	62
2.17	Principe général de la mesure de phase à fréquence constante.	63
2.18	Schéma d'un dispositif à ondes de surface de type Rayleigh.	63
2.19	Schéma d'un dispositif à onde de surface permettant la génération d'une onde de Love.	64
2.20	Phénomène de triple transit [121].	67

2.21	Phénomène de réflexion dans les transducteurs IDT : (a) structure simple-doigt ou l'addition des signaux réfléchis est en phase entraînant la formation d'une onde réfléchie d'amplitude non-nulle. (b) structure double-doigts où les ondes réfléchies sont en opposition de phase et donc s'annulent réciproquement . . . . .	67
2.22	Flow Chart de fabrication des lignes à retard SAW . . . . .	69
2.23	Représentation de la découpe inclinée des puces permettant la minimisation des réflexions parasites. . . . .	69
2.24	Amplitude du paramètre de transmission pour des puces découpées de façon droite sans absorbant (en rouge), avec absorbant (en vert) et découpée de façon inclinée (en bleu). . . . .	70
2.25	Image par microscopie électronique à balayage des micro-soudures reliant le dispositif SAW au circuit imprimé. . . . .	71
2.26	Chambre VCE 100 disponible au LCE (Marseille) dans laquelle les capteurs SAW ont été testés. . . . .	71
2.27	Évolution de la concentration en particules dans l'enceinte VCE 1000 lors de la génération de particules issues de fumée de bougie mesurée par l'OPC. . . . .	72
2.28	Évolution de la phase des capteurs SAW en présence de particules fines dans l'enceinte VCE 1000. . . . .	73
2.29	Évolution de la vitesse de phase d'une onde de Love dans un guide de silice de 800 nm d'épaisseur (en bleu) et 1,8 $\mu\text{m}$ d'épaisseur (en rouge). . . . .	74
2.30	Évolution de la sensibilité gravimétrique d'un dispositif à onde de Love avec un guide de silice de 800 nm d'épaisseur (en bleu) et 1,8 $\mu\text{m}$ d'épaisseur (en rouge). . . . .	75
2.31	Evolution des phases de capteurs SAW à ondes de Love recouvert de 1,8 $\mu\text{m}$ (bleu) et 800 nm (rouge) de silice avec la concentration particulaire présente dans l'enceinte. . . . .	76
3.1	Schéma du phénomène d'impaction sur un étage d'impacteur en cascade. . . . .	79
3.2	Représentation de l'efficacité de collection des étages d'impaction : (a) en fonction du diamètre des particules, (b) en fonction du nombre de Stokes. . . . .	80
3.3	Représentation du système P'AIR comprenant les étages d'impaction et les capteurs SAW. . . . .	81
3.4	Représentation d'éléments finis pour divers types et ordres. . . . .	85
3.5	Illustration d'un maillage par triangulation. . . . .	85
3.6	Représentation du maillage d'un modèle d'étage d'impaction PM10 fonctionnant à 3 Lpm : (a) quatre trous $Re = 295$ , (b) deux trous $Re = 470$ et (c) un seul trou $Re = 720$ (image générée par le logiciel de maillage "gmsh" [154]). . . . .	86
3.7	Vitesse du flux d'un étage d'impaction PM10 fonctionnant à 3 Lpm à un seul trou $Re = 720$ . . . . .	87

3.8	Pression de l'air d'un étage d'impaction PM10 fonctionnant à 3 Lpm à un seul trou $Re = 720$ . . . . .	87
3.9	Efficacité de collection simulée d'un étage d'impacteur fonctionnant à 3 Lpm avec un diamètre de coupure $d_{50}=10 \mu\text{m}$ : en bleu une configuration à sept trous ( $Re = 203$ ), en rouge à quatre trous ( $Re = 295$ ), en vert à deux trous ( $Re = 470$ ) et en jaune à un seul trou ( $Re = 720$ ). . . . .	88
3.10	Efficacité de collection simulée d'un étage d'impacteur fonctionnant à 3 Lpm avec un diamètre de coupure $d_{50}=2,5 \mu\text{m}$ : en bleu une configuration à dix trous ( $Re = 397$ ), en rouge à cinq trous ( $Re = 630$ ), en vert à trois trous ( $Re = 884$ ) et en jaune à un seul trou ( $Re = 1840$ ). . . . .	89
3.11	Efficacité d'aspiration $\eta_{asp}$ en fonction du nombre de Stokes pour différents ratios $\frac{U_0}{U}$ [67] . . . . .	91
3.12	Représentation schématique de la cheminée d'entrée d'air. . . . .	92
3.13	Version cylindrique de la cheminée de l'impacteur P' AIR. . . . .	93
3.14	Version conique de la cheminée de l'impacteur P' AIR. . . . .	93
3.15	Écoulement à l'entrée de des entrée d'air dans un vent extérieur = 2 x la vitesse de prélèvement pour un chapeau cylindrique (à gauche) et conique (à droite) . . . . .	94
3.16	Plan de la plaque d'impaction intégrant le capteur SAW. . . . .	95
3.17	Vue en coupe de la plaque d'impaction mettant en évidence la distance entre les trous et la plaque d'impaction. . . . .	95
3.18	Écoulement de l'air dans deux modèles d'étage d'impaction PM10 : modèle avec (a) $S/W = 8$ et (b) $S/W = 10$ (image Comsol Multiphysics®) . . . . .	96
3.19	Illustration de l'assemblage du premier prototype. . . . .	97
3.20	Capteur intégré sur la plaque d'impaction comprenant une ligne de référence protégée et une ligne de mesure. . . . .	98
3.21	Image de l'impacteur complet positionné dans la chambre de mesure permettant la réalisation de tests en présence de particules. . . . .	99
3.22	Évolution des phases des quatre lignes à retard durant les deux cycles de mesure. . . . .	99
3.23	Évolution différentielle des phases obtenues au niveau des étages PM2,5 et PM10 durant deux cycles de mesure en présence de fumée de bougie. . . . .	100
3.24	Représentation de la zone d'impaction des particules par rapport au chemin de propagation de l'onde de surface. . . . .	101
3.25	Représentation schématique des plaques d'impaction : (a) version d'origine, (b) nouvelle version. . . . .	102
3.26	Photographie des deux versions des plaques d'impaction intégrant les capteurs SAW : à droite version d'origine, à gauche nouvelle version. . . . .	103

3.27	Représentation des plaques d'impaction et de la zone de collection des particules (a) version avec le capteur centré, (b) capteur décentré. . . . .	103
3.28	Schéma de la plaque d'impaction avec les vias assurant l'homogénéité de la masse électrique : (a) version avec un faible nombre de vias, (b) nouvelle version contenant le nombre nécessaire de vias autour de la ligne de transmission. . . . .	104
3.29	Amplitudes des paramètres de transmission $S_{21}$ de capteurs montés sur des circuits imprimés avec un nombre insuffisant de vias (en rouge) et un nombre suffisant (en bleu) mesurées par un analyseur de réseau. . . . .	104
3.30	Illustration de l'assemblage du deuxième prototype (image Solid Works®). . . . .	105
4.1	Banc de caractérisation du dispositif P' AIR en environnement intérieur, contenant le système de pompage, l'électronique de mesure et la référence ePM. . . . .	108
4.2	Évolution des phases différentielles des capteurs SAW au niveau des étages PM <sub>2,5</sub> (en bleu) et PM <sub>10</sub> (en vert) en présence d'injections successives de particules issues de fumée de bougie (de $t_1$ à $t_3$ ) et d'étain de fer à souder (de $t_3$ à $t_5$ ). . . . .	109
4.3	Images au microscope de la surface de l'étage PM <sub>2,5</sub> après plusieurs cycles de mesure avec un agrandissement : (a) $\times 20$ et (b) $\times 50$ . . . . .	111
4.4	Images au microscope de la surface de l'étage PM <sub>10</sub> après plusieurs cycles de mesure avec un agrandissement : (a) $\times 10$ , (b) $\times 20$ et (c) $\times 50$ . . . . .	111
4.5	Comparaison de la dérivée de la phase différentielle du capteur SAW au niveau de l'étage PM <sub>2,5</sub> (courbe verte) avec la concentration des particules PM <sub>2,5</sub> mesurée avec le compteur optique ePM (courbe bleue). . . . .	113
4.6	Représentation de la variation de phase du capteur en fonction de la concentration des particules de diamètre supérieur à 2,5 $\mu\text{m}$ présentes dans l'air. . . . .	114
4.7	Graphe de l'évolution des phases des lignes à retard des capteurs SAW au niveau des deux étages en fonction du temps avant l'application du calcul différentiel. . . . .	115
4.8	Graphe de l'évolution des phases différentielles des capteurs SAW sur les deux étages PM <sub>10</sub> (en rouge) et PM <sub>2,5</sub> (en bleu) en fonction du temps. . . . .	116
4.9	Évolution des phases différentielles des étages PM <sub>2,5</sub> (en bleu) et PM <sub>10</sub> (en rouge) lors de deux cycles de pompage en présence de particules sable d'Arizona. . . . .	118
4.10	Banc expérimental de génération de particules du LRGP à Nancy . . . . .	119
4.11	Distribution granulométrique de particules de quartz avant et après filtration par un étage d'impaction $d_{50}=2,5 \mu\text{m}$ mettant en évidence le phénomène de rebonds avec une filtration quasi inexistante. . . . .	119
4.12	Évolution des phases différentielles des capteurs SAW recouverts de silicone au niveau des étages PM <sub>2,5</sub> et PM <sub>10</sub> lors de 3 cycles de pompage successifs en présence de particules de sable d'Arizona. . . . .	121

4.13	Comparaison de la dérivée de la phase différentielle du capteur SAW au niveau de l'étage PM2,5 recouvert d'une couche anti rebond en PTFE de 600 nm d'épaisseur avec la concentration des particules PM2,5 mesurée avec le compteur optique ePM.	122
4.14	Évolution des phases différentielles de capteurs SAW, recouverts de 600 nm de Teflon, au niveau des étages PM2,5 (en bleu) et PM10 (en rouge) en présence de particules de plâtre. . . . .	123
4.15	Modélisation d'un système constitué d'un résonateur QCM et d'une particule déposée à sa surface [167]. . . . .	124
4.16	Représentation de la fréquence d'oscillation d'un système QCM / particule en fonction du paramètre d'attachement [167]. . . . .	125
4.17	Évolution théorique de la vitesse de phase l'onde de Love en fonction l'épaisseur de la couche d'or. . . . .	127
4.18	Évolution théorique de la sensibilité gravimétrique du capteur SAW en fonction l'épaisseur de la couche d'or. . . . .	127

## LISTE DES TABLES

1.1	Classification des salles blanches selon la norme ISO14644-1 [20]. . . . .	9
1.2	Nombre de Reynolds et régimes correspondants [31]. . . . .	13
1.3	Nombre de Knudsen [31]. . . . .	19
1.4	Tableau récapitulatif des principales caractéristiques du TEOM 1405 [68]. . . . .	36
1.5	Caractéristiques du compteur optique Grimm E-11[70]. . . . .	37
1.6	Tableau récapitulatif des caractéristiques du modèle ELPI®+de la société Dekati® [73]. . . . .	39
1.7	Tableau récapitulatif et comparatif des instruments de caractérisation des aérosols pour la mesure de la pollution atmosphérique. . . . .	40
2.1	Tableau indiquant les coefficients de couplage électromécanique dans les matériaux usuels [98]. . . . .	53
2.2	Coefficients de couplages électromécaniques dans les matériaux usuels [98]. . . . .	66
3.1	Dimensionnement des trous des étages de l'impacteur en fonction du nombre de Reynolds pour un débit de 3 Lpm. . . . .	84
3.2	Tableau de comparaison des diamètres de coupure obtenus par simulation. . . . .	89
3.3	Influence de la distance entre le trou et la plaque pour un étage d'impaction $d_{50}=10 \mu\text{m}$ . . . . .	96
4.1	Pertes d'insertion mesurées en fonction de l'épaisseur de couche de PTFE déposée sur l'ensemble du dispositif SAW. . . . .	121



## BIBLIOGRAPHIE

- [1] Armelle Baeza and Francelyne Marano. Pollution atmosphérique et maladies respiratoires : Un rôle central pour le stress oxydant. *médecine/sciences*, 23(5) :497–501, May 2007. ISSN 0767-0974, 1958-5381. doi : 10.1051/medsci/2007235497. URL <http://www.medecinesciences.org/10.1051/medsci/2007235497>.
- [2] William Dab, Claire Ségala, Frédéric Dor, Bernard Festy, Philippe Lameloise, Yvon Le Moullec, Alain Le Tertre, Sylvia Médina, Philippe Quénel, Benoît Wallaert, and others. Pollution atmosphérique et santé : Corrélation ou causalité ? Le cas de la relation entre l'exposition aux particules et la mortalité cardio-pulmonaire. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 51(2) :203–219, 2001. URL <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/10473289.2001.10464268>.
- [3] Douglas W. Dockery, Frank E. Speizer, Daniel O. Stram, James H. Ware, John D. Spengler, and Benjamin G. Ferris. Effects of Inhalable Particles on Respiratory Health of Children. *American Review of Respiratory Disease*, 139(3) :587–594, March 1989. ISSN 0003-0805. doi : 10.1164/ajrccm/139.3.587. URL <http://www.atsjournals.org/doi/abs/10.1164/ajrccm/139.3.587>.
- [4] I. Annesi-Maesano, D. Caillaud, F. Lavaud, D. Moreau, Y. Le Moullec, A. Taytard, G. Pauli, and D. Charpin. Exposition aux particules atmosphériques fines et développement des maladies allergiques de l'enfant. Résultats épidémiologiques issus de l'étude des six villes (ISAAC-2 France). *Revue Française d'Allergologie et d'Immunologie Clinique*, 48(6) : 427–433, October 2008. ISSN 0335-7457. doi : 10.1016/j.allerg.2008.03.004. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0335745708001342>.
- [5] Robin C. Puett, Jaime E. Hart, Jeff D. Yanosky, Christopher Paciorek, Joel Schwartz, Helen Suh, Frank E. Speizer, and Francine Laden. Chronic fine and coarse particulate exposure, mortality, and coronary heart disease in the Nurses' Health Study. *Environmental health perspectives*, 117(11) :1697, 2009. URL <http://search.proquest.com/openview/05e89837599f4ae380ae3837f0bfa038/1?pq-origsite=scholar>.
- [6] Francine Laden, Joel Schwartz, Frank E. Speizer, and Douglas W. Dockery. Reduction in Fine Particulate Air Pollution and Mortality. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 173(6) :667–672, March 2006. ISSN 1073-449X. doi : 10.1164/rccm.200503-443OC. URL <http://www.atsjournals.org/doi/abs/10.1164/rccm.200503-443OC>.
- [7] Hualiang Lin, Jun Tao, Yaodong Du, Tao Liu, Zhengmin Qian, Linwei Tian, Qian Di, Shannon Rutherford, Lingchuan Guo, Weilin Zeng, Jianpeng Xiao, Xing Li, Zhihui He, Yanjun Xu, and Wenjun Ma. Particle size and chemical constituents of ambient particulate pollution associated with cardiovascular mortality in Guangzhou, China. *Environmental Pollution*,

- 208, Part B :758–766, January 2016. ISSN 0269-7491. doi : 10.1016/j.envpol.2015.10.056. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0269749115301561>.
- [8] Joel Schwartz, Douglas W. Dockery, and Lucas M. Neas. Is Daily Mortality Associated Specifically with Fine Particles ? *Journal of the Air & Waste Management Association*, 46 (10) :927–939, October 1996. ISSN 1096-2247. doi : 10.1080/10473289.1996.10467528. URL <http://dx.doi.org/10.1080/10473289.1996.10467528>.
- [9] P. Wicks, D. van den Hout, and M. Lutz. Clean Air for Europe. In *Transport and Chemical Transformation in the Troposphere*, pages 32–35. Springer, 2001. URL [http://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-642-56722-3\\_7](http://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-642-56722-3_7).
- [10] Airparif. Effets de la pollution, 2010. URL <https://www.airparif.asso.fr/pollution/effets-de-la-pollution-generalites#pollution>.
- [11] International Agency for Research on Cancer. *Outdoor air pollution a leading environmental cause of cancer deaths*. International Agency for Research on Cancer, 2013.
- [12] Airparif. Réglementation - Épisodes de pollution, 2010. URL <https://www.airparif.asso.fr/reglementation/episodes-pollution>.
- [13] W. H. O. Joint, World Health Organization, and others. Health risks of particulate matter from long-range transboundary air pollution. 2006. URL <http://apps.who.int/iris/handle/10665/107691>.
- [14] Isabelle Derville and Nicolas Michelot. Le plan particules : des mesures nationales et locales pour améliorer la qualité de l’air. 2011. URL [http://lodel.irevues.inist.fr/pollution-atmospherique/docannexe/file/560/59\\_derville.pdf](http://lodel.irevues.inist.fr/pollution-atmospherique/docannexe/file/560/59_derville.pdf).
- [15] Legifrance. LOI 2009-967 du 3 août 2009 de programmation relative à la mise en œuvre du Grenelle de l’environnement, 2009.
- [16] Pramod Kulkarni, Paul A Baron, and Klaus Willeke. Introduction to aerosol characterization. *Aerosol Measurement : Principles, Techniques, and Applications*, 3, 2011.
- [17] William C. Hinds. *Aerosol Technology : Properties, Behavior, and Measurement of airborne Particles (2nd, 1999)*.
- [18] Ministère de l’Environnement, de l’Energie et de la Mer. Particules, 2015. URL <http://www.developpement-durable.gouv.fr/Particules.html>.
- [19] OAR US EPA. Particulate Matter (PM) Basics, 2016. URL <https://www.epa.gov/pm-pollution/particulate-matter-pm-basics>.
- [20] ISO ISO. 14644-1. *Salles propres et environnements maîtrisés apparentés Partie, 1*, 1999.
- [21] Yan-Lin Zhang and Fang Cao. Fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) in China at a city level. *Scientific Reports*, 5 :14884, October 2015. ISSN 2045-2322. doi : 10.1038/srep14884. URL <http://www.nature.com/srep/2015/151015/srep14884/full/srep14884.html>.

- [22] Walter John. Size distribution characteristics of aerosols. *Aerosol measurement : principles, techniques and applications*, pages 41–54, 2010. URL [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA41&dq=size+distribution+characteristics+of+aerosols&ots=Gm5oAITROs&sig=gsOFWk4v\\_ZjcqfRZMUtjH1CTJFo](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA41&dq=size+distribution+characteristics+of+aerosols&ots=Gm5oAITROs&sig=gsOFWk4v_ZjcqfRZMUtjH1CTJFo).
- [23] Kenneth T. Whitby. The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmospheric Environment (1967)*, 12(1) :135–159, 1978. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0004698178901968>.
- [24] Véronique GHERSI, Amandine ROSSO, Sophie MOUKHTAR, Karine LÉGER, Jean SCIARE, Michaël BRESSI, José NICOLAS, Anaïs FERON, and Nicolas BONNAIRE. Origine des particules fines (PM). *Pollution atmosphérique*, 189, 2012. URL [http://www.appanpc.fr/\\_docs/1/fckeditor/file/Revues/PollutionAtmospherique/Hors-serie-particules-novembre-2012/p--%20Gher\(1\).pdf](http://www.appanpc.fr/_docs/1/fckeditor/file/Revues/PollutionAtmospherique/Hors-serie-particules-novembre-2012/p--%20Gher(1).pdf).
- [25] P. Lenschow, H. J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J. D. Preuß, and W. Reichenbacher. Some ideas about the sources of PM10. *Atmospheric Environment*, 35 :S23–S33, January 2001. ISSN 1352-2310. doi : 10.1016/S1352-2310(01)00122-4. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231001001224>.
- [26] Air PACA. Cartothèque., 2014. URL <http://www.airpaca.org/cartotheque>.
- [27] Air PACA. Emiprox | Inventaire des émissions PACA 2013, 2014. URL <http://emiprox.airpaca.org/graph.php>.
- [28] CLMH Navier. Mémoire sur les lois du mouvement des fluides. *Mémoires de l'Académie Royale des Sciences de l'Institut de France*, 6 :389–440, 1823. URL [http://cdarve.web.cern.ch/cdarve/Publications\\_CD/Navier\\_Darve.pdf](http://cdarve.web.cern.ch/cdarve/Publications_CD/Navier_Darve.pdf).
- [29] Alexandre Joel Chorin, Jerrold E. Marsden, and Jerrold E. Marsden. *A mathematical introduction to fluid mechanics*, volume 3. Springer, 1990. URL <http://link.springer.com/content/pdf/10.1007/978-1-4684-0082-3.pdf>.
- [30] A. Sommerfeld. A contribution to the hydrodynamical explanation of turbulent fluid motions. In *Proc. Int. Congress Math. Rome*, volume 3, pages 116–124, 1908.
- [31] Pramod Kulkarni, Paul A. Baron, and Klaus Willeke. Fundamentals of single particle transport. *Aerosol Measurement : Principles, Techniques, and Applications*, page 15, 2011. URL <https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA15&dq=fundamentals+of+single+particle+transport&ots=Gm4xDJSQIs&sig=dIunLLsaa3TyGxIh9kODNcyP3S0>.
- [32] Jean LM Poiseuille. Experimental research on the movement of liquids in tubes of very small diameters. *Mémoires présentés par divers savants a l'Académie Royale des Sciences de l'Institut de France*, 9, 1846.
- [33] R. Nagarajan. Particle Characterization-Transport Properties : Cohesion forces, 2012. URL [https://www.youtube.com/watch?v=7\\_e1dhsLxTo&list=PL1FB61CA43389A7BC&index=23](https://www.youtube.com/watch?v=7_e1dhsLxTo&list=PL1FB61CA43389A7BC&index=23).

- [34] Fritz London. Zur theorie und systematik der molekularkräfte. *Zeitschrift für Physik*, 63 (3-4) :245–279, 1930. URL <http://link.springer.com/article/10.1007/BF01421741>.
- [35] Fritz London. The general theory of molecular forces. *Trans. Faraday Soc.*, 33 :8b–26, 1937. URL <http://pubs.rsc.org/en/content/articlepdf/1937/ft/ft937330008b>.
- [36] H. C. Hamaker. The London—van der Waals attraction between spherical particles. *physica*, 4(10) :1058–1072, 1937. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0031891437802037>.
- [37] E. M. Lifshitz. The theory of molecular attractive forces between solids. 1956. URL [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=TyTwkkmk\\_3twC&oi=fnd&pg=PA329&dq=Lifshitz+E.W.,+Soviet+Phys.+JETP,+2,+73,+1956&ots=cINp3ITmS&sig=CPZJhDFht1BSjEzksjJToGbVWeU](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=TyTwkkmk_3twC&oi=fnd&pg=PA329&dq=Lifshitz+E.W.,+Soviet+Phys.+JETP,+2,+73,+1956&ots=cINp3ITmS&sig=CPZJhDFht1BSjEzksjJToGbVWeU).
- [38] Fabienne Espitalier, René David, Jacques Schwartzenruber, Fabien Baillon, Alain Gaudand, Michel Cournil, Frédéric Gruy, and Ana Cameirão. Les Fondamentaux de la Cristallisation et de la Précipitation. - Forces de London-Van der Waals, 2009. URL [http://nte.mines-albi.fr/CristalGemme/co/uc\\_ForcesVdW.html](http://nte.mines-albi.fr/CristalGemme/co/uc_ForcesVdW.html).
- [39] J. N. Israelachvili and D. Tabor. The Measurement of Van Der Waals Dispersion Forces in the Range 1.5 to 130 nm. *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 331(1584) :19–38, November 1972. ISSN 1364-5021, 1471-2946. doi : 10.1098/rspa.1972.0162. URL <http://rspa.royalsocietypublishing.org/content/331/1584/19>.
- [40] Charles Augustin Coulomb. *Premier-[troisième] mémoire sur l'électricité et le magnétisme*. Académie Royale des sciences, 1785.
- [41] Klaus Willeke. Temperature dependence of particle slip in a gaseous medium. *Journal of Aerosol Science*, 7(5) :381–387, 1976. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850276900240>.
- [42] Michael D. Allen and Otto G. Raabe. Slip correction measurements of spherical solid aerosol particles in an improved Millikan apparatus. *Aerosol Science and Technology*, 4(3) : 269–286, 1985. URL <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/02786828508959055>.
- [43] Adolf Fick. Über diffusion. *Poggendorff's Annalen der Physik*, 94 :59–86, 1855.
- [44] George Gabriel Stokes. *On the effect of the internal friction of fluids on the motion of pendulums*, volume 9. Pitt Press, 1851. URL <http://www.nawcc-index.net/Articles/Stokes-InternalFriction.pdf>.
- [45] J. D. Sartor and C. E. Abbott. Prediction and measurement of the accelerated motion of water drops in air. *Journal of Applied Meteorology*, 14(2) :232–239, 1975. URL [http://journals.ametsoc.org/doi/abs/10.1175/1520-0450\(1975\)014%3C0232:PAMOTA%3E2.0.CO;2](http://journals.ametsoc.org/doi/abs/10.1175/1520-0450(1975)014%3C0232:PAMOTA%3E2.0.CO;2).
- [46] Sheldon Kay Friedlander. *Smoke, dust and haze : Fundamentals of aerosol behavior*. New York, Wiley-Interscience, 1977. 333 p., 1, 1977. URL <http://adsabs.harvard.edu/abs/1977wi..book.....F%EF%BF%BD%C3%9C>.

- [47] R. Nagarajan. Particle Characterization-Transport Properties : Drag & Inertia, 2012. URL [https://www.youtube.com/watch?v=7\\_e1dhsLxTo&list=PL1FB61CA43389A7BC&index=23](https://www.youtube.com/watch?v=7_e1dhsLxTo&list=PL1FB61CA43389A7BC&index=23).
- [48] August Beer. Bestimmung der Absorption des rothen Lichts in farbigen Flüssigkeiten. *Annalen der Physik*, 162(5) :78–88, 1852.
- [49] Christopher M. Sorensen, Josef Gebhart, TIMOTHY J. O’Hern, Daniel J. Rader, P. Kulkarni, P. A. Baron, and K. Willeke. Optical measurement techniques : fundamentals and applications. *Aerosol measurement : principles, techniques, and applications*, 3rd edn. Wiley, Hoboken, pages 269–312, 2011. URL <https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA269&dq=optical+measurement+techniques:+fundamentals+and+applications&ots=Gm4xEJVRHu&sig=vyy94oTrtAI6kp9cGXjx34Q-LrI>.
- [50] R. Nagarajan. Particle Characterization-Morphological Characterization : Particle counters., 2012. URL <https://www.youtube.com/watch?v=7YKtDBXLAX4&index=9&list=PL1FB61CA43389A7BC>.
- [51] PETER C. Raynor, DAVID Leith, K. W. Lee, and R. Mukund. Sampling and analysis using filters. *Aerosol measurement : principles, techniques and applications*, 2011. URL [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA107&dq=sampling+and+analysis+using+filters+raynor&ots=Gm5ovIRQKv&sig=NUHpiSjhAhR7LJ1\\_m2b4YAh3pvk](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA107&dq=sampling+and+analysis+using+filters+raynor&ots=Gm5ovIRQKv&sig=NUHpiSjhAhR7LJ1_m2b4YAh3pvk).
- [52] Virgil A. Marple and Bernard A. Olson. Sampling and measurement using inertial, gravitational, centrifugal, and thermal techniques. *Aerosol Measurement : Principles, Techniques, and Applications*, page 129, 2011. URL <https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA129&dq=sampling+and+measurement+using+inertial,+gravitational&ots=Gm5ovISYPq&sig=GpVpPpuILwZ7M8nKV5kTpaeC6e8>.
- [53] Tai Chan and Morton Lippmann. Particle collection efficiencies of air sampling cyclones : an empirical theory. *Environmental Science & Technology*, 11(4) :377–382, 1977. URL <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/es60127a003>.
- [54] David Leith and Dilip Mehta. Cyclone performance and design. *Atmospheric Environment (1967)*, 7(5) :527–549, 1973. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0004698173900061>.
- [55] Robert E. DeOtte Jr. A model for the prediction of the collection efficiency characteristics of a small, cylindrical aerosol sampling cyclone. *Aerosol Science and Technology*, 12(4) :1055–1066, 1990. URL <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/02786829008959415>.
- [56] Susanne V Hering. Impactors, cyclones, and other inertial and gravitational collectors. *Air Sampling Instruments*, 8 :279–321, 1995.

- [57] VCGTMD Prodi, C. Melandri, G. Tarroni, T. De Zaiacomo, M. Formignani, and D. Hochrainer. An inertial spectrometer for aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, 10(4) : 411–419, 1979. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850279900363>.
- [58] Leonard Greenburg and George Wetherall Smith. *A new instrument for sampling aerial dust*, volume 2392. US Dept. of the Interior, Bureau of Mines, 1922.
- [59] W. Chueinta and P. K. Hopke. Beta gauge for aerosol mass measurement. *Aerosol Science & Technology*, 35(4) :840–843, 2001. URL <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/027868201753227398>.
- [60] H. Dresia and F. Spohr. Experience with the Radiometric Dust Measuring Unit “Beta Staubmeter.”. *Staub*, 31 :12–27, 1971.
- [61] PEDRO LILIENFELD and JOHN DULCHINOS. Portable instantaneous mass monitor for coal mine dust. *The American Industrial Hygiene Association Journal*, 33(3) :136–145, 1972. URL <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/0002889728506623>.
- [62] Rudolf B. Husar. Atmospheric particulate mass monitoring with a beta radiation detector. *Atmospheric Environment (1967)*, 8(2) :183–188, 1974. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0004698174900286>.
- [63] J. M. Jaklevic, N. W. Madden, and C. E. Wiegand. A precision beta gauge using a plastic scintillator and photomultiplier detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 214(2) :517–518, 1983. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0167508783906257>.
- [64] Takao Gotoh. Application of digital image processing to a beta-gauge for determining mass concentration of suspending particulate matter in atmosphere. *International journal of radiation applications and instrumentation. Part A. Applied radiation and isotopes*, 43(5) :659–662, 1992. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/088328899290036E>.
- [65] Gerhart Friedlander, E. S. Macias, and Joseph W. Kennedy. *Nuclear and radiochemistry*. John Wiley & Sons, 1981. URL [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=jU6t-if5e5AC&oi=fnd&pg=PA1&dq=Friedlander+1981+&ots=sKxszq8w8q&sig=7VF-e1\\_pJ-V4k2DvintgyAmFnAw](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=jU6t-if5e5AC&oi=fnd&pg=PA1&dq=Friedlander+1981+&ots=sKxszq8w8q&sig=7VF-e1_pJ-V4k2DvintgyAmFnAw).
- [66] R. J. Tropp, P. J. Kuhn, and J. R. Brock. A new method for measuring the particle size distribution of aerosols. *Review of Scientific Instruments*, 51(4) :516–520, 1980. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/51/4/10.1063/1.1136227>.
- [67] John E. Brockmann. Aerosol transport in sampling lines and inlets. *Aerosol Measurement : Principles, Techniques, and Applications*, pages 69–105, 2011. URL <https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ETvXooNW4-EC&oi=fnd&pg=PA69&dq=aerosol+transport+in+sampling+lines+and+inlets&ots=Gm5owINUQu&sig=L8iF0b9xvwXZxGZ4dVhU6JpzPf8>.
- [68] Thermo Fisher. Moniteur de particules ambiantes en continu 1405 TEOM™, 2010. URL <https://www.thermofisher.com/order/catalog/product/TEOM1405>.

- [69] Atmo Franche Comté, 2017. URL <http://www.atmo-franche-comte.org/>.
- [70] Grimm. ENVIRO-11e, 2014. URL <http://wiki.grimm-aerosol.de/index.php?title=ENVIRO-11E>.
- [71] Dekati®. PM10 Impactor, 2017. URL <http://www.dekati.com/products/Fine%20Particle%20Measurement/Dekati%C2%AE%20PM10%20Impactor>.
- [72] Dekati®. DLPI+, 2017. URL <http://www.dekati.com/products/Fine%20Particle%20Measurement/DLPI%2B>.
- [73] Dekati®. ELPI®+, 2017. URL <http://www.dekati.com/products/Fine%20Particle%20Measurement/ELPI%C2%AE%2B>.
- [74] MSP CORP. Real-Time QCM-MOUDI Impactor Model 140, 2017. URL <http://www.mspscorp.com/topics/real-time-qcm-moudi-impactor-model-140/>.
- [75] Modi Chen, Francisco J. Romay, Lin Li, Amir Naqwi, and Virgil A. Marple. A novel quartz crystal cascade impactor for real-time aerosol mass distribution measurement. *Aerosol Science and Technology*, 50(9) :971–983, September 2016. ISSN 0278-6826. doi : 10.1080/02786826.2016.1213790. URL <http://dx.doi.org/10.1080/02786826.2016.1213790>.
- [76] Robert Hooke. 1678, Lectures de potentia restitutiva, or of spring explaining the power of springing bodies. *Printed for John Martyn printer to the Royal Society, Bell in St. Paul's church-yard*, 1931.
- [77] Bertram Alexander Auld. *Acoustic fields and waves in solids*, volume 2. RE Krieger, 1990.
- [78] Marc Lamothe. *Capteurs à ondes élastiques de surface à codage spectral ultra large bande*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, Besançon, 2014.
- [79] Daniel ROYER and Eugène DIEULESAINT. Acoustique equations générales. *Techniques de l'ingénieur. Bruit et vibrations*, (AF3810), 2000. URL <http://cat.inist.fr/?aModele=afficheN&cpsidt=20554311>.
- [80] Isaac Newton. *Philosophiae naturalis principia mathematica*, London 1687. *English translation : Sir Isaac Newton's Mathematical Principles*, Univ. of Calif. Press, Berkeley, 1966.
- [81] Daniel Royer and Eugene Dieulesaint. *Ondes élastiques dans les solides : propagation libre et guidée*, volume 1. Masson, 1996.
- [82] Daniel ROYER and Eugène DIEULESAINT. Acoustique Propagation dans un solide. *Techniques de l'ingénieur. Bruit et vibrations*, (AF3814), 2001. URL <http://cat.inist.fr/?aModele=afficheN&cpsidt=20554313>.
- [83] Vincent Laude. *Physique des dispositifs à onde élastiques*, 2005. URL <http://members.femto-st.fr/sites/femto-st.fr.vincent-laude/files/content/poly2.pdf>.
- [84] René Descartes. *La Dioptrique* (1637). *Oeuvres de Descartes*, 6 :79–228, 1897.

- [85] Horace Lamb. On waves in an elastic plate. In *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, volume 93, pages 114–128. The Royal Society, 1917. URL <http://rspa.royalsocietypublishing.org/content/royprsa/93/648/114.full.pdf>.
- [86] Jeffrey L. Bleustein. A new surface wave in piezoelectric materials. *Applied Physics Letters*, 13(12) :412–413, 1968. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/13/12/10.1063/1.1652495>.
- [87] John William Strutt. On waves propagated along the plane surface of an elastic solid. *Proceedings of the London Mathematical Society*, 17(1) :4, 1885. URL <http://library.seg.org/doi/pdf/10.1190/1.9781560801931.ch3i>.
- [88] Jared Kirschner. Surface acoustic wave sensors (SAWS) : design for application. *Microelectromechanical Systems*, pages 1–11, 2010.
- [89] Augustus Edward Hough Love. *Some problems of geodynamics*. Cambridge University Press, 1911. URL <https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=q1G2CgAAQBAJ&oi=fnd&pg=PR11&dq=Some+Problems+of+Geodynamics+Love+1911&ots=d0VL-TG1mo&sig=bT583xDHmeHnlel5W4baqxj4xTs>.
- [90] J. Curie and P. Curie. Sur l'électricité polaire dans les cristaux hémihédres à faces inclinées. présentée par m. desains. *Comptes rendus de l'Académie des sciences*, 91 :383–386, 1880.
- [91] P. Curie and J. Curie. Développement par pression de l'électricité polaire dans les hémihédres à faces inclinées. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*, 91, 1883.
- [92] J. G.Lippmann. Principe de la conservation de l'électricité ou second principe de la théorie des phénomènes électriques. In *Annales de chimie et de physique*, volume 24, pages 145–177, 1881.
- [93] Jacques Curie and Pierre Curie. Contractions et dilatations produites par des tensions électriques dans les cristaux hémihédres à faces inclinées. *Comptes-rendus de l'Académie des Sciences*, 93 :1137–1140, 1881.
- [94] Walter-G. Cady. The piezo-electric resonator. *Proceedings of the institute of radio engineers*, 10(2) :83–114, 1922. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=1666707](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=1666707).
- [95] Alexandre Clairet. *Modélisation et analyse numérique de résonateurs à quartz à ondes de volume*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2014.
- [96] T. R. Meeker. Publication and Proposed Revision of ANSI/IEEE Standard 176-1987. *IEEE Transactions on Ultrasonics Ferroelectrics and Frequency Control*, 43(5) :717–772, 1996.
- [97] Michel Brissaud. *Matériaux piézoélectriques : caractérisation, modélisation et vibration*. PPUR presses polytechniques, 2007. URL [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=wdfUzPJh4aQC&oi=fnd&pg=PR5&dq=Brissaud+mat%C3%A9riaux&ots=s\\_RkvI9Mm2&sig=A8lmyc8arbyZre8uRS\\_JXQ\\_eYxA](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=wdfUzPJh4aQC&oi=fnd&pg=PR5&dq=Brissaud+mat%C3%A9riaux&ots=s_RkvI9Mm2&sig=A8lmyc8arbyZre8uRS_JXQ_eYxA).

- [98] Philippe DEFRANOULD and Peter WRIGHT. Filtres à ondes de surface. *Techniques de l'ingénieur. Electronique*, 2(E2200) :E2200–1, 2000. URL <http://cat.inist.fr/?aModele=afficheN&cpsidt=15995223>.
- [99] B. Francois, D. Richter, H. Fritze, Z. J. Davis, C. Droit, B. Guichardaz, V. Petrini, G. Martin, J.-M. Friedt, and S. Ballandras. Wireless and passive sensors for high temperature measurements. In *SENSORDEVICES 2012, The Third International Conference on Sensor Device Technologies and Applications*, pages 46–51, 2012. URL <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00767695/>.
- [100] R. C. Turner, Pa A. Fuierer, R. E. Newnham, and T. R. Shroud. Materials for high temperature acoustic and vibration sensors : a review. *Applied acoustics*, 41(4) :299–324, 1994. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0003682X94900914>.
- [101] J.-M. Friedt, C. Droit, G. Martin, and S. Ballandras. A wireless interrogation system exploiting narrowband acoustic resonator for remote physical quantity measurement. *Review of scientific instruments*, 81(1) :014701, 2010.
- [102] J.-M. Friedt, C. Droit, S. Ballandras, S. Alzuaga, G. Martin, and P. Sandoz. Remote vibration measurement : A wireless passive surface acoustic wave resonator fast probing strategy. *Review of Scientific Instruments*, 83(5) :055001, 2012.
- [103] Günter Sauerbrey. Verwendung von Schwingquarzen zur Wägung dünner Schichten und zur Mikrowägung. *Zeitschrift für physik*, 155(2) :206–222, 1959. URL <http://link.springer.com/article/10.1007/BF01337937>.
- [104] S. J. Martin, A. J. Ricco, T. M. Niemczyk, and G. C. Frye. Characterization of SH acoustic plate mode liquid sensors. *Sensors and actuators*, 20(3) :253–268, 1989. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0250687489801246>.
- [105] Stephen J. Martin, Victoria Edwards Granstaff, and Gregory C. Frye. Characterization of a quartz crystal microbalance with simultaneous mass and liquid loading. *Analytical Chemistry*, 63(20) :2272–2281, 1991. URL <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ac00020a015>.
- [106] Hubert Perrot. Piezoelectric Transduction (QCM). *Chemical Sensors and Biosensors*, pages 71–91, 2012. URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/9781118561799.ch4/summary>.
- [107] David T. Chang, Randall L. Kubena, and Pamela R. Patterson. *Method of fabricating an ultra thin quartz resonator component*. Google Patents, September 2010. URL <https://www.google.com/patents/US7802356>.
- [108] K. M. Lakin and J. S. Wang. UHF composite bulk wave resonators. In *1980 Ultrasonics Symposium*, pages 834–837. IEEE, 1980. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=1534455](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=1534455).
- [109] K. M. Lakin and J. S. Wang. Acoustic bulk wave composite resonators. *Applied Physics Letters*, 38(3) :125–127, 1981. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/38/3/10.1063/1.92298>.

- [110] T. W. Grudkowski, J. F. Black, T. M. Reeder, D. E. Cullen, and R. A. Wagner. Fundamental-mode VHF/UHF miniature acoustic resonators and filters on silicon. *Applied Physics Letters*, 37(11) :993–995, 1980. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/37/11/10.1063/1.91745>.
- [111] Meddy Vanotti. *Développement d'un système de détection en milieux gazeux d'espèces à risque pour le contrôle environnemental (application au monoxyde de carbone et à l'hydrogène). Composants et systèmes micro-acoustiques*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2015. URL <http://www.theses.fr/s108604>.
- [112] Gunilla Wingqvist, Ventsislav Yantchev, and Ilia Katardjiev. Mass sensitivity of multilayer thin film resonant BAW sensors. *Sensors and Actuators A : Physical*, 148(1) :88–95, 2008. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0924424708004172>.
- [113] Robert Aigner. Volume manufacturing of BAW-filters in a CMOS fab. In *Acoustic Wave Device Symposium*, pages 129–34, 2004. URL <http://www.te.chiba-u.jp/~ken/Symp/Symp2004/PDF/2B3.PDF>.
- [114] David Rabus. *Résonateur à ondes élastiques de volume à harmoniques élevés (HBARs) pour mesures gravimétriques : application à la détection de gaz*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2013. URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00923625/>.
- [115] R. A. Moore, J. T. Haynes, and B. R. McAvoy. High overtone bulk resonator stabilized microwave sources. In *1981 Ultrasonics Symposium*, pages 414–424. IEEE, 1981. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=1534594](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=1534594).
- [116] Dana S. Bailey, M. M. Driscoll, R. A. Jelen, and B. R. McAvoy. Frequency stability of high-overtone bulk-acoustic resonators. *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, 39(6) :780–784, 1992. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=165564](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=165564).
- [117] S. P. Caldwell, M. M. Driscoll, S. D. Stansberry, D. S. Bailey, and H. L. Salvo. High-overtone, bulk acoustic resonator frequency stability improvements. In *Frequency Control Symposium, 1993. 47th., Proceedings of the 1993 IEEE International*, pages 744–748. IEEE, 1993. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=367472](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=367472).
- [118] Kenneth M. Lakin, Gerald R. Kline, and Kevin T. McCarron. High-Q microwave acoustic resonators and filters. *IEEE transactions on microwave theory and techniques*, 41(12) : 2139–2146, 1993. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=260698](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=260698).
- [119] J.-M. Friedt, Laurent Francis, K.-H. Choi, F. Frederix, and A. Campitelli. Combined atomic force microscope and acoustic wave devices : Application to electrodeposition. *Journal of Vacuum Science & Technology A*, 21(4) :1500–1505, 2003. URL <http://scitation.aip.org/content/avs/journal/jvsta/21/4/10.1116/1.1579014>.
- [120] R. M. White and F. W. Voltmer. Direct piezoelectric coupling to surface elastic waves. *Applied physics letters*, 7(12) :314–316, 1965. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/7/12/10.1063/1.1754276>.

- [121] David Morgan. *Surface acoustic wave filters : With applications to electronic communications and signal processing*. Academic Press, 2010. URL [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ITLn6tj4SDQC&oi=fnd&pg=PP2&dq=David+Morgan+Surface&ots=5bWb7k647i&sig=9uiABMSAy\\_ic8sOvxkoKnS1G8I4](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=ITLn6tj4SDQC&oi=fnd&pg=PP2&dq=David+Morgan+Surface&ots=5bWb7k647i&sig=9uiABMSAy_ic8sOvxkoKnS1G8I4).
- [122] A. D'Amico, A. Palma, and E. Verona. Palladium-surface acoustic wave interaction for hydrogen detection. *Applied Physics Letters*, 41(3) :300–301, 1982. URL <http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.93471>.
- [123] W.-E. Bulst, Gerhard Fischerauer, and Leonhard Reindl. State of the art in wireless sensing with surface acoustic waves. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 48(2) :265–271, 2001. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=915404](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=915404).
- [124] Christophe Droit. *Système d'interrogation à distance de grandeurs physiques à base de capteurs à ondes élastiques de surface pour mesures paramétriques sur une gamme de température étendue (-196/+ 650°C)*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2013. URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01228025/>.
- [125] S. J. Martin and A. J. Ricco. Effective utilization of acoustic wave sensor responses : simultaneous measurement of velocity and attenuation. In *Ultrasonics Symposium, 1989. Proceedings., IEEE 1989*, pages 621–625. IEEE, 1989. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=67058](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=67058).
- [126] W. D. Bowers, R. L. Chuan, and T. M. Duong. A 200 MHz surface acoustic wave resonator mass microbalance. *Review of scientific instruments*, 62(6) :1624–1629, 1991. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/62/6/10.1063/1.1142442>.
- [127] Henry Wohltjen and Raymond Dessy. Surface acoustic wave probe for chemical analysis. I. Introduction and instrument description. *Analytical Chemistry*, 51(9) :1458–1464, 1979. URL <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ac50045a024>.
- [128] Lamia El Fissi. *Détection et mesure de nanoparticules pour les applications de capteurs en milieu liquide*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2010. URL [https://www.researchgate.net/profile/L\\_Fissi/publication/41022413\\_Dtection\\_et\\_mesure\\_de\\_nanoparticules\\_pour\\_les\\_applications\\_de\\_capteurs\\_en\\_milieu\\_liquide/links/5434ebf50cf294006f7371c2.pdf](https://www.researchgate.net/profile/L_Fissi/publication/41022413_Dtection_et_mesure_de_nanoparticules_pour_les_applications_de_capteurs_en_milieu_liquide/links/5434ebf50cf294006f7371c2.pdf).
- [129] Electra Gizeli, Nicholas J. Goddard, Christopher R. Lowe, and Adrian C. Stevenson. A Love plate biosensor utilising a polymer layer. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 6(1) :131–137, 1992. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/092540059280044X>.
- [130] Kourosch Kalantar Zadeh, Adrian Trinchi, Wojtek Wlodarski, and Anthony Holland. A novel Love-mode device based on a ZnO/ST-cut quartz crystal structure for sensing applications. *Sensors and Actuators A : Physical*, 100(2) :135–143, 2002. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0924424702000389>.
- [131] Zuokuing Wang, J. D. N. Cheeke, and C. K. Jen. Sensitivity analysis for Love mode acoustic gravimetric sensors. *Applied physics letters*, 64(22) :2940–2942, 1994. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/64/22/10.1063/1.111976>.

- [132] Günter Kovacs, M. J. Vellekoop, R. Haueis, G. W. Lubking, and A. Venema. A Love wave sensor for (bio) chemical sensing in liquids. *Sensors and Actuators A : Physical*, 43(1) : 38–43, 1994. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/092442479300660V>.
- [133] Virginie Blondeau-Patissier, Gwladys Lengaigne, William Daniau, Gilles Martin, Pascal Blind, Daniel Hauden, Marie-helene Nadal, and Sylvain Ballandras. Accurate measurement of anhydride fluorhydric acid concentration in controlled gaseous flow with STW sensors. *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, 54(8) :1687–1691, 2007. URL <http://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/4291519/>.
- [134] Meddy Vanotti, Virginie Blondeau-Patissier, David Rabus, Jean-Yves Rauch, Jean-Michel Barbe, and Sylvain Ballandras. Development of acoustic devices functionalized with cobalt corroles or metalloporphyrines for the detection of carbon monoxide at low concentration. *Sensors & Transducers*, 14(1) :197, 2012.
- [135] WD Bowers and RL Chuan. Surface acoustic-wave piezoelectric crystal aerosol mass microbalance. *Review of scientific instruments*, 60(7) :1297–1302, 1989.
- [136] Wen-chang Hao, Jiu-ling Liu, Ming-hua Liu, and Shi-tang He. Development of a new surface acoustic wave based PM 2.5 monitor. In *Piezoelectricity, Acoustic Waves, and Device Applications (SPAUDA), 2014 Symposium on*, pages 52–55. IEEE, 2014. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=6998524](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=6998524).
- [137] Meddy Vanotti, Virginie Blondeau-Patissier, Virginie Moutarlier, and Sylvain Ballandras. Analysis of palladium and yttrium–palladium alloy layers used for hydrogen detection with SAW device. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 217 :30–35, 2015.
- [138] Bruno Francois. *Capteurs passifs à ondes élastiques de surface sans fil pour mesure paramétrique sur une gamme de température étendue (25/650°C)*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2013. URL <http://www.theses.fr/2013BESA2027>.
- [139] David Rabus, Jean-Michel Friedt, Sylvain Ballandras, Gilles Martin, Emile Carry, and Virginie Blondeau-Patissier. High-sensitivity open-loop electronics for gravimetric acoustic-wave-based sensors. *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, 60(6) :1219–1226, 2013. URL [http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs\\_all.jsp?arnumber=6521071](http://ieeexplore.ieee.org/xpls/abs_all.jsp?arnumber=6521071).
- [140] Thomas Pastureaud, Vincent Laude, and Sylvain Ballandras. Stable scattering-matrix method for surface acoustic waves in piezoelectric multilayers. *Applied physics letters*, 80(14) :2544–2546, 2002. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/80/14/10.1063/1.1467620>.
- [141] Alexandre Reinhardt, Thomas Pastureaud, Sylvain Ballandras, and Vincent Laude. Scattering matrix method for modeling acoustic waves in piezoelectric, fluid, and metallic multilayers. *Journal of applied physics*, 94(10) :6923–6931, 2003. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/94/10/10.1063/1.1621053>.
- [142] Alexandre Reinhardt. *Simulation, conception et réalisation de filtres à ondes de volume dans des couches minces piézoélectriques*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2005.

- [143] K. R. May. The cascade impactor : an instrument for sampling coarse aerosols. *Journal of Scientific instruments*, 22(10) :187, 1945. URL <http://iopscience.iop.org/article/10.1088/0950-7671/22/10/303/meta>.
- [144] C. N. Davies, Mary Aylward, Dorothy Leacey, and others. Impingement of dust from air jets. *Arch. Indust. Hyg. & Occupational Med.*, 4(4) :354–97, 1951. URL <http://www.cabdirect.org/abstracts/19522701318.html>.
- [145] Wc Ee Ranz and J. B. Wong. Impaction of dust and smoke particles on surface and body collectors. *Industrial & Engineering Chemistry*, 44(6) :1371–1381, 1952. URL <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ie50510a050>.
- [146] Chandan Misra, Manisha Singh, Si Shen, Constantinos Sioutas, and Peter M Hall. Development and evaluation of a personal cascade impactor sampler (PCIS). *Journal of Aerosol Science*, 33(7) :1027–1047, 2002.
- [147] SB Kwon, KS Lim, JS Jung, GN Bae, and KW Lee. Design and calibration of a 5-stage cascade impactor (K-JIST cascade impactor). *Journal of aerosol science*, 34(3) :289–300, 2003.
- [148] Philip Demokritou, Seung Joo Lee, Stephen T Ferguson, and Petros Koutrakis. A compact multistage (cascade) impactor for the characterization of atmospheric aerosols. *Journal of aerosol science*, 35(3) :281–299, 2004.
- [149] Virgil A Marple and Klaus Willeke. Impactor design. *Atmospheric Environment (1967)*, 10(10) :891–896, 1976.
- [150] Virgil A. Marple, Benjamin Y. H. Liu, and Kenneth T. Whitby. Fluid mechanics of the laminar flow aerosol impactor. *Journal of Aerosol Science*, 5(1) :1 – 16, 1974. ISSN 0021-8502. doi : [http://dx.doi.org/10.1016/0021-8502\(74\)90002-0](http://dx.doi.org/10.1016/0021-8502(74)90002-0). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850274900020>.
- [151] Darrell W. Pepper and Juan C. Heinrich. *The finite element method : basic concepts and applications*. Taylor & Francis, 2005. URL [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=x01sBgAAQBAJ&oi=fnd&pg=PP1&dq=comsol+software+finite+element+method&ots=pdlJEtV\\_D4&sig=mwELmQR94NFoiklHrFbX5\\_0EfJ0](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=x01sBgAAQBAJ&oi=fnd&pg=PP1&dq=comsol+software+finite+element+method&ots=pdlJEtV_D4&sig=mwELmQR94NFoiklHrFbX5_0EfJ0).
- [152] COMSOL Multiphysics®. Logiciel de modélisation, 2014. URL <https://www.comsol.fr/>.
- [153] COMSOL Multiphysics®. Logiciel de Mécanique des Fluides - Simulations en Mécanique des Fluides (CFD), 2014. URL <https://www.comsol.fr/cfd-module>.
- [154] Christophe Geuzaine and Jean-François Remacle. Gmsh : A 3-D finite element mesh generator with built-in pre-and post-processing facilities. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 79(11) :1309–1331, 2009. URL <http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/nme.2579/full>.
- [155] Virendra Sethi and Walter John. Particle impaction patterns from a circular jet. *Aerosol science and technology*, 18(1) :1–10, 1993. URL <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/02786829308959580>.

- [156] S. P. Belyaev and L. M. Levin. Techniques for collection of representative aerosol samples. *Journal of Aerosol Science*, 5(4) :325–338, 1974. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/002185027490130X>.
- [157] L. Armbruster and G. Zebel. Theoretical and experimental studies for determining the aerosol sampling efficiency of annular slot probes. *Journal of aerosol science*, 16(4) :335–341, 1985. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850285900412>.
- [158] Benjamin YH Liu and David YH Pui. Aerosol sampling inlets and inhalable particles. *Atmospheric Environment (1967)*, 15(4) :589–600, 1981. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0004698181901906>.
- [159] Sensidyne. GilAir Plus Personal Air Sampling Pump (1 - 5,000 cc/min), 2017. URL <http://www.sensidyne.com/air-sampling-equipment/gilian-air-sampling-pumps/gilair-plus/>.
- [160] Philip M. Fine, Glen R. Cass, and Bernd RT Simoneit. Characterization of fine particle emissions from burning church candles. *Environmental science & technology*, 33(14) :2352–2362, 1999. URL <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/es981039v>.
- [161] N. T. Jenkins, W. M. G. Pierce, and T. W. Eagar. Particle size distribution of gas metal and flux cored arc welding fumes. *Welding J*, 84(10) :156–163, 2005. URL [https://app.aws.org/wj/supplement/WJ\\_2005\\_10\\_s156.pdf](https://app.aws.org/wj/supplement/WJ_2005_10_s156.pdf).
- [162] John W. Eaton, David Bateman, Søren Hauberg, and Rik Wehbring. GNU Octave version 4.0.0 manual : a high-level interactive language for numerical computations. 2015. Available from <http://www.gnu.org/software/octave/doc/interpreter>, 2015.
- [163] Christophe De Brouwer. Les particules diesel ultrafines : techniques de mesure à l'émission et à l'immission. 2006. URL <http://www.econologie.info/share/partager3/13517729885zrr84.pdf>.
- [164] Palas GmbH. RBG 1000, 2017. URL <http://www.palas.de/en/product/rbg1000>.
- [165] Palas GmbH. Inas® 100, 2017. URL <http://www.palas.de/en/product/inas100>.
- [166] Deep Reactive Ion Etching (DRIE) ALCATEL, 2017. URL <http://www.femto-st.fr/en/Technology-center/MIMENTO-Technology-Centre/Available-resources/Dry-and-Wet-Etching/Deep-Reactive-Ion-Etching-DRIE-ALCATEL>.
- [167] G. L. Dybwad. A sensitive new method for the determination of adhesive bonding between a particle and a substrate. *Journal of Applied Physics*, 58(7) :2789–2790, October 1985. ISSN 0021-8979. doi : 10.1063/1.335874. URL <http://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.335874>.
- [168] Ewa Vittorias, Michael Kappl, Hans-Jürgen Butt, and Diethelm Johannsmann. Studying mechanical microcontacts of fine particles with the quartz crystal microbalance. *Powder technology*, 203(3) :489–502, 2010. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0032591010003104>.
- [169] Sébastien Alzuaga. *Manipulation de gouttes de liquides par des méthodes acoustiques*. PhD thesis, Université de Franche-Comté, 2004.

[170] Dust reduction system, March 2017. URL [https://en.wikipedia.org/w/index.php?title=Dust\\_reduction\\_system&oldid=772593391](https://en.wikipedia.org/w/index.php?title=Dust_reduction_system&oldid=772593391). Page Version ID : 772593391.



## REMERCIEMENTS

**E**n premier lieu, je tiens à remercier ma directrice de thèse, Virginie Blondeau-Pâtissier, pour m'avoir encadré, soutenu et fait partager ses compétences scientifiques et technologiques tout au long de ces trois années. Je lui fais part de toute ma gratitude.

Je voudrais également remercier Pascal Kaluzny pour m'avoir donné l'opportunité d'effectuer ces travaux de thèse au sein du groupe TERA ainsi que Christophe Galvez et Laurent Fertier qui ont assuré mon encadrement pour la partie industrielle durant les deux premières années de thèse.

J'adresse mes remerciements aux membres de mon Jury, en particulier à mes deux rapporteurs Dominique Thomas et Hubert Perrot pour leur lecture attentive ainsi que les échanges constructifs permettant l'amélioration de la qualité de mon travail. J'aimerais aussi remercier Sylvain Ballandras, directeur de Frec'n'sys, d'avoir présidé mon jury et Hélène Debédât, maître de conférence à l'université de Bordeaux, pour sa venue à Besançon en qualité d'examinatrice.

Un immense merci à Meddy Vanotti pour m'avoir fait profiter de son expérience et de s'être rendu disponible tout au long de mes travaux, à David Rabus pour son aide régulière sur la carte d'interrogation, à Valérie Soumann pour sa disponibilité et son aide précieuse avec le wire-bonding et ses superbes images au MEB, à Gilles Martin pour ses coups de main fréquents sur la partie électronique et à Jean-Michel Friedt pour ses précieux conseils et ses suggestions toujours pertinentes. Je veux aussi remercier chaleureusement Djaffar Belharet pour les dépôts de PTFE ainsi que Bernard Rothlisberger pour la fabrication des pièces de l'impacteur.

Mes travaux de thèse m'ayant amené à faire des déplacements au sein d'autres laboratoires, j'adresse mes remerciements à Etienne Quivet et Daphné Buiron pour leur aide lors des expériences effectuées au LCE de Marseille ainsi que Jean-Christophe Appert-Colin lors de celles au LRGP de Nancy.

Je tiens aussi à remercier tous ceux que je côtoyais quotidiennement au département Temps-Fréquence, à mes collègues de bureau, Alexandre Clairet, Émile Carry, Sébastien Alzuaga et William Daniau. Sans oublier ceux qui ont changé de labo ou de pays : Marc, Loïc, Guillaume et Bruno. Une pensée particulière aux joueurs de badminton Florent Bassignot et Fabien Henrot et aux footeux : Jacques, Ahmed, Guillaume et Rodolphe. Je remercie aussi les autres ex-doctorants du Temps-Fréquence : Mouss, Mouloud, Alexandre, Nesrine, Maël, Christophe et Minerva.

J'aimerais aussi exprimer ma profonde gratitude à Vincent Laude et à Sarah Benchabane pour m'avoir fait découvrir le monde de la recherche. C'est en grande partie grâce à eux que je me suis retrouvé à faire cette thèse.

À titre personnel, je tiens à adresser un immense merci à tous mes amis du Club Alpin Français de Besançon, avec qui j'ai partagé d'innombrables aventures dans les différents massifs français, suisses, italiens, autrichiens et norvégiens : Nicolas, Vanessa, Gaspard, Benoît, l'autre Benoît, Gladys, David, Bruno, Cybèle, Jean-Luc, Hugo, Fred, Christian, Mathieu, Rémi, Émilie, Jean-Michel, Michel, Anne-Cécile, Anne-Lise et Xavier.

Je tiens à tirer mon chapeau à tous les membres du Campus-Sport de l'Université de Franche-Comté, en particulier à Claude Varlet et Nicolas Dellatre avec qui j'ai partagé de nombreux et merveilleux moments, que ce soit en salle d'escalade, dans les sentiers jurassiens ou sur les sommets alpins. Chapeau bas également à Claude Parratte pour sa gentillesse et pour diriger avec brio la meilleure association sportive de France. Un grand merci aussi à Thierry Boissenin pour sa bonne humeur quotidienne balle au pied ou guitare à la main. Et bien sûr, une dédicace très spéciale à la "bande" qui a grandement fait partie de ma vie durant ces années de thèse : Guillaume, Juju, Caro, l'autre Juju et Alix.

Je souhaite aussi remercier mes colocataires qui me supportent quotidiennement : Thibault, Lisa et Mouna, sans oublier mes anciens colocataires qui m'ont plus ou moins supporté : Salah, Anna, Nathalie, Amanda et Aglaé. Je me dois de citer également mes autres amis de Besançon : Jérôme, Irène, Lucas, Oda, Fanny, Samy, Hélène, Laura et Anna. Sans oublier bien sûr les vieux copains d'Alger : Ninou, Djamil, Rachid, Yakoub, Momoh, Raouf, Youcef, Karim, Amine et Lyes.

Enfin, *last but not least*, à mes parents et à mon frère qui m'ont toujours soutenu malgré la distance, je les remercie infiniment et leur dédie spécialement ce travail.



## Résumé :

De nos jours, les problèmes liés à la pollution atmosphérique se posent de façon récurrente et croissante. Parmi les divers polluants connus, les particules en suspensions se distinguent comme étant les plus problématiques pour la santé publique, notamment celles appelées PM10 et PM2,5, correspondant respectivement aux particules de diamètre inférieur à 10 et 2,5  $\mu\text{m}$ . Chaque année, plus de deux millions de décès prématurés peuvent être attribués aux effets de la pollution de l'air selon l'Organisation Mondiale de la Santé.

L'objectif de ce travail était de développer un outil de mesure de particules PM2,5 et PM10 dans l'air basé sur des capteurs à ondes élastiques de surface. Ces travaux de thèse, financés via une bourse industrielle de type CIFRE dans un partenariat entre l'institut FEMTO-ST et l'entreprise Ecologicsense, s'inscrivent dans le cadre du projet P'AIR (Particle Atmospheric Intelligent Research) dont le cahier des charges requérait la réalisation d'un dispositif très sensible, miniaturisé et peu consommateur en énergie, dédié à la séparation et la mesure en temps réel de particules fines et ce, pour un faible coût de fabrication. Pour y parvenir, un dispositif fondé sur des capteurs à ondes élastiques de surface intégrés dans un impacteur en cascade a été entièrement conçu. Un prototype fonctionnant à 3 Lpm a été fabriqué au cours de ses travaux, sa capacité à séparer puis à mesurer les particules PM2,5 et PM10 en temps réel a été prouvée expérimentalement. Cette combinaison capteurs SAW/impacteur, originale et innovante, a permis la rédaction d'un brevet déposé en avril 2016.

**Mots-clés :** Qualité de l'air, PM10, PM2.5, Capteur SAW, ondes élastiques de surface, impacteur en cascade, onde de Love

## Abstract:

During the last few years, environmental pollution is becoming a big concern. According the World Health Organization, more than two million premature death are caused by atmospheric pollution. Particles smaller than 10 microns and 2.5 microns in diameter, respectively PM10 and PM2.5, are a major cause of health issues since they are likely to deeply penetrate the human lungs. This research was financed by an industrial scholarship (CIFRE) within a partnership between the institute FEMTO-ST and the company Ecologicsense. It was undertaken in the framework of the P'AIR (Particle Atmospheric Intelligent Research project) project, which aims to develop new innovative low cost sensors in order create a network.

In this thesis, we developed Surface Acoustic Wave (SAW) sensors, combined with a cascade impactor, to perform PM10 and PM2.5 particle concentration measurement. A prototype, operating at 3 Lpm, was built during this research and its ability to separate and measure PM2.5 and PM10 particles was demonstrated. This innovative combination SAW/impactor allowed the filing of a patent in April 2016.

**Keywords:** SAW sensor, Cascade Impactor, PM10, PM2.5, Love waves

The logo for the SPIM (École doctorale SPIM) features the letters 'S', 'P', 'I', and 'M' in a large, white, sans-serif font. A horizontal green bar is positioned to the left of the 'S'.

■ École doctorale SPIM 1 rue Claude Goudimel F - 25030 Besançon cedex

■ tél. +33 [0]3 81 66 66 02 ■ [ed-spim@univ-fcomte.fr](mailto:ed-spim@univ-fcomte.fr) ■ [www.ed-spim.univ-fcomte.fr](http://www.ed-spim.univ-fcomte.fr)

The logo for the University of Franche-Comté (UFC) features the letters 'U' and 'FC' in a large, bold, black font. A vertical green bar is positioned to the left of the 'U'. Below the letters, the text 'UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ' is written in a smaller, black, sans-serif font.