

CONSIDÉRATIONS SUR LES BATTERIES DE DIFFUSION. LEUR APPLICATION A LA DÉTERMINATION DE LA RÉPARTITION GRANULOMÉTRIQUE DES AÉROSOLS RADIOACTIFS

A. RENOUX*, A. MOUDEN* et G. MADELAINE**

(Manuscrit reçu le 3 décembre 1973)

RÉSUMÉ

Après un bref rappel sur les différentes équations relatives aux batteries de diffusion rectangulaires, on donne un aperçu de l'évolution des principales techniques de fabrication de ces dispositifs de sélection de particules, et l'on signale les avantages et les inconvénients de chacun d'entre eux.

En annexe est présenté un programme de calcul, qui permet d'étudier les possibilités théoriques des batteries de diffusion à plaques parallèles, à partir de la variation des différents paramètres liés au système de captation.

ABSTRACT

After a quick reminder of the different equations relating to rectangular diffusion batteries, we are given a glimpse at the evolution of the main manufacturing technics of these particules selector devices and the advantages and drawbacks of each are mentioned.

A computation program is added as an appendix which will allow one to study the theories of possibilities of parallel plates diffusion batteries proceeding from the variation of the different parameters linked with the intercepting system.

Au cours de ces dernières années, la distribution granulométrique des aérosols radioactifs a fait l'objet de nombreux travaux. Les méthodes électrostatiques permettant de sélectionner les particules chargées électriquement en fonction

* Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique. Faculté des Sciences de Brest, Avenue V. Le Gorgeu, 29200 Brest.

** Service Technique d'Etudes de Protection et de Pollution Atmosphérique du C.E.A., Centre d'Etudes Nucléaires, B.P. n° 6, 92260 Fontenay-aux-Roses.

de leurs dimensions deviennent, bien sûr, inopérantes dans le cas d'aérosols neutres. Heureusement, la théorie de la diffusion des particules par le mouvement brownien, moyennant quelques hypothèses, a résolu ce problème en donnant naissance aux batteries de diffusion permettant de déterminer un diamètre moyen de l'aérosol atmosphérique.

Dans cet article, après avoir indiqué l'évolution des recherches dans le domaine des batteries de diffusion, nous présentons un programme de calcul sur ordinateur, permettant de tracer directement des réseaux de courbes de transmission de différentes batteries de diffusion. L'évolution d'un courant d'air chargé en poussières, en régime laminaire et en l'absence de toute turbulence, a été étudiée au moyen de systèmes de batteries à tubes et à plaques. Le déplacement moyen des particules est proportionnel à la racine carrée du temps de traversée [1]. En conséquence, les particules sont suffisamment déviées pour atteindre les parois de la batterie, et l'on admet qu'elles y restent alors fixées.

I - APERÇU SUR LES DIFFÉRENTES ÉQUATIONS RELATIVES AUX BATTERIES DE DIFFUSION A PLAQUES PARALLÈLES

Il semble maintenant certain que les résultats les plus significatifs sont obtenus à l'aide de batteries à plaques parallèles, plutôt qu'avec des batteries à tubes cylindriques. De ce fait, nous limiterons cet exposé aux batteries à plaques.

Le calcul théorique de NOLAN et GUERRINI [2] sur la transmission de noyaux à travers une batterie rectangulaire aboutit à l'équation :

$$\frac{n}{n_0} = 1,066 \exp\left(-\frac{3,67 b DL}{aQ}\right) + 0,0065 \exp\left(-\frac{44,4 b DL}{aQ}\right) \quad (1)$$

où n et n_0 représentent respectivement les concentrations des particules à la sortie et à l'entrée de la batterie.

- D le coefficient de diffusion,
- L la longueur du canal,
- b la largeur du canal,
- $2a$ la distance entre deux plaques consécutives,
- Q le débit de l'air à travers un canal.

Cette relation a été appliquée par les mêmes auteurs, à trois types de batteries.

— Le premier appareil (*a*), constitué de huit plaques de verre, d'épaisseur 0,211 cm, de longueur 76 cm, de largeur 19 cm, séparées les unes des autres par des bandes de verre de même épaisseur, a servi à réaliser des mesures de dimensions de noyaux de condensation atmosphériques.

— Le second appareil (*b*) a été construit pour remédier à certaines critiques relatives, d'une part, à l'existence possible de turbulence à l'entrée de la première batterie par suite de la grande épaisseur des lames, d'autre part, à l'effet de charge électrostatique sur les lames de verre. On utilise cette fois des plaques minces en

duralumin, d'épaisseur 0,046 cm, de longueur 100 cm, de largeur 24,9 cm et distantes les unes des autres de 0,624 cm.

Ces deux appareils ayant l'inconvénient d'être encombrants, les mêmes auteurs imaginèrent une troisième batterie (c) de 10 canaux, de dimensions plus réduites, à l'aide de plaques de laiton d'épaisseur 0,054 cm, de longueur 30 cm, de largeur 9,9 cm et séparées entre elles par des cales de même métal et de même épaisseur, les plaques et cales étant reliées entre elles par une sorte de laque assurant une bonne étanchéité.

Il faut noter que toutes ces batteries fonctionnent en position verticale. En effet, des mesures effectuées dans les mêmes conditions, mais en plaçant la batterie en position horizontale, ont donné des résultats aberrants, ce qui s'explique par les effets de la pesanteur, effets non négligeables par suite de la petitesse de la distance entre les plaques, par rapport à la longueur du canal.

Quelques années plus tard, J.J. NOLAN *et al.* [3] ont corrigé la relation (I) aboutissant à de nouvelles expressions de transmission, obtenues à l'aide de deux méthodes de calcul différentes :

$$\frac{n}{n_0} = 0,906 \exp\left(-\frac{3,79 b DL}{aQ}\right) + 0,053 \exp\left(-\frac{42,8 b DL}{aQ}\right) \quad (\text{II})$$

$$\frac{n}{n_0} = 0,911 \exp\left(-\frac{3,77 b DL}{aQ}\right) + 0,053 \exp\left(-\frac{42,9 b DL}{aQ}\right) \quad (\text{III})$$

n , n_0 , D , L , b , a et Q gardent la même signification.

Ces relations qui conduisent à des résultats concordants, diffèrent beaucoup de celles de NOLAN et GUERRINI par le coefficient du premier terme. La méthode de NOLAN et GUERRINI entraînait un calcul assez laborieux et de petites erreurs de calcul suffisaient pour modifier sensiblement les valeurs des coefficients.

GORMLEY [3], quant à lui, propose la relation suivante :

$$\frac{n}{n_0} = 0,9099 \exp\left(-\frac{3,77 b DL}{aQ}\right) + 0,053 \exp\left(-\frac{42,8 b DL}{aQ}\right) \quad (\text{IV})$$

on constate un bon accord avec les deux relations précédentes.

Le premier type d'appareil (a) a servi à DEIGNAN [4] en 1948 à suivre les variations du coefficient de diffusion apparent des noyaux de condensation atmosphériques renfermés dans une enceinte en fonction du temps, et plus tard, à NOLAN et DOGHERTY [5] à différentes mesures de dimensions et de distribution de charges de noyaux de condensation. Lorsque le coefficient de diffusion est petit, il est nécessaire, si l'on veut obtenir une perte de noyaux appréciable, d'opérer à faible débit, mais, la batterie (a) ayant un volume assez grand, la durée de l'expérience s'en trouve prolongée; aussi, ces derniers auteurs [5] ont-ils imaginé de modifier la batterie (a) de NOLAN et GUERRINI en réduisant le volume total (volume interplaque + volume du système d'adaptation) et en gardant à peu près constant le rapport $3,77 \frac{bL\epsilon}{a}$ où ϵ représente le nombre de canaux.

Comparons les caractéristiques des deux batteries :

	NOLAN et GUERRINI	NOLAN et DOHERTY
Longueur (L)	76,0 cm	37,9 cm
Largeur b	19,0 cm	12,05 cm
Épaisseur $2a$	0,21 cm	0,0813 cm
Nombre de canaux (c)	7	10
Volume entre plaques	2 100 cm ³	400 cm ³
Volume pièces connection	2 500 cm ³	160 cm ³
Volume total	4 600 cm ³	560 cm ³
$\frac{a}{3,77 bLc}$	$2,76 \times 10^{-6}$	$2,36 \times 10^{-6}$

Le volume de la batterie de NOLAN et DOHERTY est huit fois plus faible que celui de la batterie de NOLAN et GUERRINI. Néanmoins, les auteurs ont constaté un accord très satisfaisant entre les mesures effectuées par les deux batteries.

En 1952, l'équation de base a été revue par DE MARCUS et THOMAS [6] qui ont donné l'expression suivante :

$$\frac{n}{n_0} = 0,915 e^{-x} + 0,059 e^{-11,8x} \quad (V)$$

où
$$x = 3,77 \frac{bDL}{aQ}$$

Cette expression est en bon accord avec celle de NOLAN et NOLAN [3], puisque, pour des valeurs de $\frac{n}{n_0}$ inférieures à 0,90, il y a une différence de moins de 1 % sur $\frac{n}{n_0}$, pour une même valeur de D . Cette relation est généralement considérée comme très valable et a été utilisée dans les travaux de THOMAS [7], pour la détermination des dimensions de particules d'aérosol, à l'aide d'une batterie de diffusion en graphite, de caractéristiques suivantes :

Longueur L	= 47,3 cm
Largeur b	= 12,7 cm
Épaisseur d'un canal $2a$	= 0,01 cm
Nombre de canaux	= 20

Les pièces de raccordement destinées à diriger le courant d'air de la batterie dans un tuyau de $\frac{3}{8}$ inch ont une capacité de 1 litre. Cette batterie a été utilisée pour mesurer les particules de 0,2 μm de diamètre environ. Les travaux de THOMAS confirment la validité de la méthode de la batterie de diffusion pour toutes les particules de rayon inférieur à 0,3 μm . Au-dessus de cette limite de 0,3 μm la batterie donne des résultats d'une imprécision croissante.

CHAMBERLAIN et ses collaborateurs [8], en 1957, dans une étude sur le rôle des noyaux de condensation comme porteurs de particules radioactives, ont construit

une batterie dont les plaques en verre ont été revêtues, par vaporisation, d'un film en aluminium, de façon à les relier à la terre. Leur batterie comportant 11 plaques de verre de dimensions suivantes :

Longueur L	= 38 cm
Largeur b	= 11,95 cm
Distance moyenne entre 2 plaques $2a$	= 0,081 cm

a servi à la détermination du coefficient de diffusion moyen de noyaux de condensation atmosphériques radio-actifs.

De nombreuses recherches ont été faites sur la détermination du coefficient de diffusion moyen des aérosols hétérogènes par la méthode des batteries de diffusion. POLLAK et METNIEKE [9-10] ont montré qu'on pouvait expliquer l'influence du débit sur la valeur du coefficient de diffusion, par la présence d'un aérosol polydispersé, présentant une certaine distribution granulométrique. LASSEN et RAU [11] ont étudié la fixation, sur les aérosols atmosphériques, des produits de désintégration du radon et du thoron, en fonction de la taille des particules. Ils ont utilisé une batterie de diffusion, non pour la détermination de la grosseur des particules, mais seulement comme tamis, pour une sélection selon la taille. La batterie, de 25 canaux, constituée de plaques de verre de 6 mm d'épaisseur argentées sur toutes les faces a les dimensions suivantes : longueur 50 cm, largeur 24 cm; des feuilles de cuivre, larges de 2 cm et longues de 50 cm, délimitent la largeur des canaux à 0,01 cm.

POLLAK et DALY [12] suggèrent, pour la mesure du coefficient de diffusion d'un aérosol situé dans une enceinte sphérique, un tout autre type de batterie, ne comportant ni tube de connection, ni pièce d'adaptation. La batterie en duralumin ($L = 50$ cm, $b = 8$ cm, $2a = 0,04$ cm et $c = 5$), s'adapte à l'enceinte par une bride. De la sorte, l'air chargé en aérosols pénètre directement dans la partie utile de la batterie. Un tube de prise d'air, pour la mesure de la concentration en aérosols, pénètre dans la sphère jusqu'au niveau de l'entrée de la batterie. A la suite de cette dernière, l'air débouche, sans pièce intermédiaire, sur un compteur de noyaux de condensation photo-électrique. En fait, la batterie et le compteur forment une seule pièce et se trouvent tout à fait adaptés pour des mesures dans une enceinte, ou à l'air libre.

Plus récemment, afin de mettre en évidence des noyaux radioactifs atmosphériques électriquement neutres, d'autres auteurs [13-14-15] ont utilisé des batteries de diffusion dont la grande innovation par rapport aux précédentes réside dans le très grand nombre de canaux. Les caractéristiques de ces batteries sont les suivantes :

800 plaques métalliques,	
Longueur L	= 35 cm
Largeur b	= 10 cm
Distance entre 2 plaques consécutives $2a$	= 0,06 mm

Ces batteries ont donné d'excellents résultats, car, grâce au grand nombre de canaux utilisés, on peut les faire traverser par un débit total d'air suffisant pour pouvoir opérer sur les aérosols radioactifs naturels.

Jusqu'à maintenant, nous n'avons considéré que des expressions de $\frac{n}{n_0}$ ne comportant que deux termes seulement. TWOMEY [16] a obtenu des termes supplémentaires à l'aide d'une calculatrice rapide. Ces résultats donnent :

$$\begin{aligned} \frac{n}{n_0} = & 0,91035 \exp(-3,77035 \times D) + 0,05315 \exp(-42,8605 \times D) \\ & + 0,015279 \exp(-124,63 \times D) + 0,00681 \exp(-249,06 \times D) \\ & + 0,00374 \exp(-416,2 \times D) + 0,00232 \exp(-626 \times D) \dots + \dots \text{ etc.} \end{aligned} \quad (\text{VI})$$

avec
$$x = \frac{bL}{aQ}$$

La différence avec la formule IV de GORMLEY n'est pas appréciable, mais l'évaluation des termes au-delà du premier couple peut être utile dans certains cas.

T.T. MERCER et R. MERCER [17] ont fait une étude théorique sur la perte par diffusion d'aérosols pénétrant radialement entre des plaques concentriques parallèles et circulaires de rayon R_0 et disparaissant symétriquement par un petit orifice au centre de la plaque. Ils trouvent que le nombre relatif de particules restant dans le fluide à une distance r de l'axe des plaques est :

$$\frac{n}{n_0} = 0,9104 e^{-2,8278 \nu} + 0,0531 e^{-32,147 \nu} + 0,0153 e^{-93,475 \nu} + \dots + 0,0068 e^{-186,805 \nu} + \dots \quad (\text{VII})$$

où
$$\nu = 4 \pi D (R_0^2 - r^2) / 3 Qb$$

$2b$ est la distance entre les plaques.

Tout récemment, J.W. THOMAS *et al.* [18], viennent de reprendre la relation de MARCUS et THOMAS, à la suite de l'article de MERCER et MERCER, en établissant une équation à 20 termes dont les cinq premiers sont très proches de ceux de MERCER.

Voici donc les principales théories relatives aux batteries de diffusion, Il faut remarquer que, dans la plupart des cas, les deux premiers termes suffisent largement.

II - MISE AU POINT D'UN PROGRAMME DE CALCUL POUR ORDINATEUR ADAPTÉ A L'ÉTUDE DE BATTERIES DE DIFFUSION A PLAQUES PARALLÈLES

En utilisant l'ordinateur de la Faculté des Sciences de Brest, nous avons dressé un programme de calcul à partir des deux premiers termes de l'équation de MARCUS et THOMAS, soit :

$$\begin{aligned} \frac{n}{n_0} = & 0,915 \exp(-\alpha) + 0,059 \exp(-11,8 \alpha) \quad (\text{V}) \\ \text{avec} \quad \alpha = & 3,77 \frac{bDL}{aQ} \end{aligned}$$

Toutes les données ont été mises en programme, y compris le tracé du réseau de courbes $\frac{n}{n_0} = f(D)$. $\frac{n}{n_0}$ est porté en ordonnées et D en abscisses, en coordonnées semi-logarithmiques. Chaque réseau de courbes étant la caractéristique d'une batterie bien déterminée, chacune des courbes du réseau représente la pénétration à travers la batterie pour un débit d'air donné à travers elle. Le tassement, ou le nombre de courbes du réseau est modifié sans aucune difficulté par la variation du pas du réseau, étant entendu, bien sûr, que l'on impose également à l'ordinateur de tracer ce réseau entre deux débits extrêmes. La figure 1 représente le réseau obtenu dans le cas de la batterie de diffusion actuellement en construction dans notre laboratoire. Ses caractéristiques sont les suivantes : longueur 40 cm, largeur 10 cm. Elle comportera 800 plaques de duralinox de 0,6 mm d'épaisseur, rendues équidistantes par des cales de même alliage et de même épaisseur.

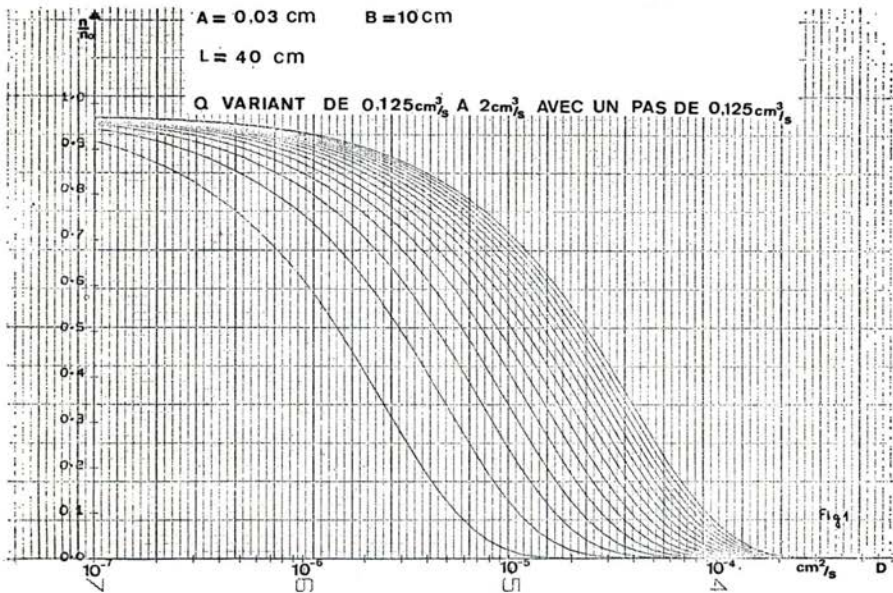


FIG. 1. — $A = 0,03 \text{ cm}$; $B = 10 \text{ cm}$; $L = 40 \text{ cm}$. Q variant de $0,125 \text{ cm}^3/\text{s}$ à $2 \text{ cm}^3/\text{s}$ avec un pas de $0,125 \text{ cm}^3/\text{s}$

Sur la figure 1, nous constatons que cette batterie arrêtera toutes les particules dont le coefficient de diffusion est supérieur à environ $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$ (rayon limite correspondant 10^{-6} cm). Son pouvoir d'arrêt sera par contre très faible vis-à-vis des particules dont le coefficient de diffusion est inférieur à $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ (rayon limite correspondant $0,3 \mu\text{m}$).

Nous comptons utiliser cette batterie à la détermination du nombre de noyaux de condensation atmosphérique radioactifs électriquement neutres, en opérant par comparaison entre un filtre ayant capté la totalité des aérosols, et un

second précédé par la batterie, suivant une méthode précédemment utilisée par l'un d'entre nous [13].

Ce travail a pu être réalisé, en partie grâce à une collaboration entre le laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique de la Faculté des Sciences de Brest (Pr RENOUX) et le Service Technique d'Etudes de Protection et de Pollution Atmosphérique du C.E.A. (M. PRADEL).

Nous remercions M. LERICHE, Collaborateur Technique à la Faculté des Sciences de Brest, grâce à qui notre programme de calcul a pu être réalisé.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] EINSTEIN A. *Ann. Physik*, 17, 549 (1905).
- [2] NOLAN J.J., GUERRINI V.H. *Proc. Roy. Irish Acad.* 43-A2, p. 5 (1935).
- [3] NOLAN J.J., NOLAN P.J., GORMLEY P. *Proc. Roy. Irish Acad.* 45-A4, p. 47 (1938).
- [4] NOLAN P.J., DEIGNAN J. *Proc. Roy. Irish Acad.*, 51, 239 (1948).
- [5] NOLAN P.J., DOHERTY D.J. *Proc. Roy. Irish Acad.*, 53, 163 (1950).
- [6] DE MARCUS W.C., THOMAS J.W. *O.R.N.L. Report* 1413 (1952).
- [7] THOMAS J.W. *Colloid Science*, 10, 246-255 (1955).
- [8] CHAMBERLAIN A.C., MEGAW W.J., WIFFEN R.D. *Geofisica pura e applicata*, 36, p. 232 (1957).
- [9] POLLAK L.W., DALY J. *Geofisica pura e applicata*, 44, p. 224 (1959).
- [10] POLLAK L.W., METNIEKS A.L. *Geofisica pura e applicata*, 37, 183-190 (1957).
- [11] LASSEN L., RAU G. *Z. Angew Physik* (1960).
- [12] POLLAK L.W., METNIEKS A.L. *Geofisica pura e applicata*, 44, 224 (1959).
- [13] RENOUX A. *Thèse Docteur ès Sciences*, Paris, 1965. Rapport C.E.A.-R 2 771.
- [14] MADELAINE G. *Thèses Docteur ès Sciences*, Paris (1968).
- [15] BILLARD F., MADELAINE G., CHAPUIS A., FONTAN J., LOPEZ A. *Radioprotection*, vol. 6, n° 1 (1971).
- [16] TWOMEY (S.) *Bull. de l'Obs. du Puy de Dôme*, n° 4, 173-180 (1962).
- [17] MERCER T.T., MERCER R. *Journal of aerosol Science*, vol. 1, n° 4, nov. 1970.
- [18] TAN C.W., THOMAS J.W. *Journal of aerosol Science*, vol. 3, n° 1, fév. 1972.

ANNEXE
PROGRAMME DE CALCUL

Le programme permet d'étudier les possibilités théoriques de n'importe quelle batterie de diffusion à plaques parallèles, en faisant varier les valeurs numériques des différentes variables figurant dans la relation (V).

```
// FOR
* LIST SOURCE PROGRAM
* LIST ALL
* IOCS (CARD, TYPEWRITER, DISK, PLOTTER, KEYBOARD, 1132 PRINTER)
  REAL B,A,Q,D,L
  READ (2,10) A,B,L,Q0,Q1,DQ,DD
10  FORMAT (F 12.5)
  READ (2,11) D0,D1
11  FORMAT (E 12.5)
C   TRACE DES AXES.
  PI = 3.14159
  SX = 6.75/2.54
  SY = 20./2.54
  CALL FPLOT (2,0.,0.)
  CALL SCALF (SX,SY,0.,0.)
  CALL FGRID (1,0.,0.,0.1,12)
  CALL FGRID (0,0.,0.,1.,5)
  CALL FPLOT (1,0.,1.2)
  CALL FPLOT (-2,0.,1.2)
  CALL POINT (5)
  CALL FPLOT (1,5.,0.)
  CALL FPLOT (-2,5.,0.)
  CALL POINT (2)
  X = -1.
  Do 70 N = 1,5
  X = X + 1.
  W = 1.
  Do 80 M = 1,8
  G = W + 1.
  U = (ALOG(G) - ALOG(W)) * 0.43429
  C = ALOG(W) * 0.43429
  CALL FGRID (0,X + C,0.,U,1)
80  W = W + 1.
70  CONTINUE
C   ECRITURE DES GRANDEURS SUR LES AXES
  T = 3. * PI/2.
  XD = 0.03
  Y = -0.01
  X = 0.
  DEL = 1.
  J = -7
  DO 20 I = 1,5
  CALL FCHAR (X - XD,Y,20.,20.,T)
  WRITE (7,23) J
23  FORMAT (I2)
  J = J + 1
  X = X + DEL
20  CONTINUE
  T = 0.
  Y = 0.
```

```

X = -0.20
XD = 0.005
Do 30 I = 1,12
CALL FCHAR (X,Y - XD,.10,.10,T)
WRITE (7,33) Y
33  FORMAT (F4.1)
    Y = Y + 0.101
30  CONTINUE
    CALL FCHAR (0.,1.25,.20,.20,0)
    WRITE (7,400)
400  FORMAT ('F')
    CALL FCHAR (5.1,0.,.25,.25,0)
    WRITE (7,500)
500  FORMAT ('D')
C   TRACE DES COURBES
    CALL FPLOT (1,0.,0.)
    Q = Q0
12   D = D0
    K = 1
13   ALPHA = (3.77 * B * D * L)/(A * Q)
    F = 0.915 * EXP (-ALPHA) + 0.059 * EXP (-11.8 * ALPHA)
    Z = 7 + ALOG(D) * 0.43429
    CALL FPLOT (K,Z,F)
    D = D * DD
    K = 2
    IF (D1 - D) 15,13,13
15   Q = Q + DQ
    IF (Q1 - Q) 16,12,12
16   CONTINUE
    CALL FCHAR (3.5,1.2,.15,.15,0)
    WRITE (7,300) A,B
300  FORMAT ('A = ',F7.3,4X,'B = ',F6.2)
    CALL FCHAR (3.5,1.1,.20,.20,0)
    WRITE (7,100) L
100  FORMAT ('L = ',F6.2,2X,'CM')
    CALL FCHAR (3.5,1.0,.15,.15,0)
    WRITE (7,200) Q0,Q1,DQ
200  FORMAT ('Q VARIANT DE ',F7.3,'A',F7.3,' AVEC UN PAS DE ',F7.3)
    CALL FPLOT (1,7.,0.)
    STOP
    END

```