



**HAL**  
open science

## Collecte des particules ultrafines à l'aide d'une colonne à bulles

Maria-Cecilia Cadavid-Rodriguez, Augustin Charvet, Denis Bemer, Dominique Thomas

### ► To cite this version:

Maria-Cecilia Cadavid-Rodriguez, Augustin Charvet, Denis Bemer, Dominique Thomas. Collecte des particules ultrafines à l'aide d'une colonne à bulles. 28ème Congrès Français sur les Aérosols, Jan 2013, Paris, France. pp.038. <hal-00872998>

**HAL Id: hal-00872998**

**<https://hal.science/hal-00872998v1>**

Submitted on 15 Oct 2013

**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.



HAL Authorization

# COLLECTE DES PARTICULES ULTRAFINES A L'AIDE D'UNE COLONNE A BULLES

## ULTRAFINE PARTICLES COLLECTION BY A BUBBLE COLUMN

M.C. Cadavid-Rodríguez (1, 2), A. Charvet (2), D. Bémer (1), D. Thomas (2).

(1) Institut National de Recherche et de Sécurité, rue du Morvan, 54509 Vandœuvre-lès-Nancy.

(2) Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP CNRS UPR 3349), Université de Lorraine, 1 rue Grandville, 54001 Nancy

### Abstract

The most effective and widely used dust separation techniques to separate ultrafine particles of a carrier fluid are fibrous media. The main problem is the clogging of the filter that induces a pressure drop increase over time and thus requires a regular cleaning of the media (or its replacement). In this context, the idea is to test bubble columns, which operate at a constant pressure drop, as an alternative to fibrous filters. This study proposes to investigate the influence of different operating conditions such as the liquid level, the air flow rate, the bubble size and the presence of beads, on the collection of ultrafine particles. Despite collection efficiencies lower than those of fibrous filters, experimental results show that bubble columns present high collection efficiency when the liquid level is high and bubbling orifices have low diameters. Besides, if gas velocity does not show an important influence on the collection efficiency, the presence of beads in the liquid increases the residence time of the bubbles in the column and thus the collection efficiency.

### Résumé

Les techniques de dépolluage les plus efficaces et largement utilisées pour séparer des particules ultrafines d'un fluide porteur sont les médias fibreux. Le principal problème est le colmatage du filtre qui induit une augmentation de la perte de charge dans le temps et nécessite donc un nettoyage régulier des médias (ou son remplacement). La séparation des particules ultrafines par voie liquide au moyen d'une colonne à bulles a été envisagée. L'influence des différentes conditions opératoires telles que la hauteur du liquide de piégeage, le débit de filtration, la taille des bulles et la présence d'un garnissage, sur la collecte des particules a été étudiée. Malgré des rendements de collecte inférieurs à ceux des filtres à fibres, les résultats expérimentaux montrent que les colonnes à bulles présentent des performances d'autant plus importantes que le niveau du liquide est élevé et que les orifices de bullage sont petits. Par ailleurs, si l'étude de l'influence de la vitesse de gaz à l'orifice sur l'efficacité de collecte des nanoparticules ne montre pas une tendance bien définie, la présence d'un garnissage dans le liquide de collecte permet d'augmenter significativement le temps de séjour des bulles dans la colonne et donc l'efficacité de collecte.

### 1. Introduction

Les techniques de dépolluage actuellement les plus efficaces et les plus utilisés pour séparer des particules d'un fluide porteur sont les médias fibreux (souvent sous forme de cartouches) de très haute efficacité constitués de fibres de taille voisine du micromètre. Le principal problème posé par la filtration de telles particules réside dans le colmatage progressif du filtre. L'opération de décolmatage qui s'ensuit peut être à l'origine d'une remise en suspension des particules ultrafines préalablement collectées par le medium et d'une détérioration de la structure du filtre à l'origine de fuites pouvant entraîner une forte dégradation de l'efficacité (Mouret et al., 2009) et ainsi nuire à l'objectif de sécurité des procédés et/ou des personnes. Le problème de colmatage du filtre au cours du temps est d'autant plus accentué dans le cas des procédés de métallisation que les concentrations en particules mesurées dans ces fumées se situent dans des fourchettes très élevées avec pas moins de  $10^9$  particules par centimètre cube (Bémer et al., 2010). De plus, les distributions granulométriques en nombre des particules émises par les procédés de métallisation mettent en évidence une population de particules très fines (plus de 90% des particules, en nombre, possèdent un diamètre inférieur à 100 nm) et donc très colmatantes. L'objectif de cette étude est d'examiner les potentialités offertes par des procédés de séparation des particules autres que les media fibreux et qui pourraient être appliqués à cette problématique de l'épuration des fumées de métallisation. Dans cette optique, les colonnes à bulles pourraient s'avérer une alternative crédible aux filtres à fibres de par leur fonctionnement à perte de charge constante. Un des autres avantages de ces séparateurs est qu'ils ne présentent aucun risque de remise en suspension de particules nanométriques lors du nettoyage étant donné

que la collecte des particules ultrafines se fait en phase liquide. Les colonnes à bulles font partie des dispositifs de contrôle les plus économiques (faible perte de charge), cependant l'étude bibliographique n'a mis en évidence que la présence de quelques études sur la collecte de particules grossières et microniques dans des colonnes à bulles (Meikap and Biswas, 2004; Bandyopadhyay and Biswas, 2006). Ainsi, les résultats manquent pour s'assurer de l'efficacité de séparation de ces systèmes d'épuration vis à vis des particules nanométriques (Charvet et al., 2011; Koch and Weber, 2012). L'objectif principal de l'étude est de comprendre les mécanismes de collecte des nanoparticules dans une colonne à bulles et d'optimiser les paramètres opératoires (diamètre des bulles, hauteur de liquide, débit de gaz, ajout d'un garnissage) de façon à faire de cette technique une alternative crédible aux media fibreux en terme d'efficacité.

## 2. Matériels et méthodes

Le banc OCEAN (**O**ptimisation de la **C**ollecte et **E**puration des **A**érosols **N**anométriques) dédié à la détermination des performances d'une colonne à bulles vis-à-vis de nanoparticules est présenté en figure 1 et peut se décomposer en trois grandes parties: **La génération** des particules ultrafines est réalisée sous courant d'argon par un générateur PALAS GFG 1000. Ce système permet de produire des particules ultrafines solides polydispersées de diamètre compris entre 5 et 30 nm pour les électrodes de cuivre. **La caractérisation** de la distribution de taille et de la concentration des particules est effectuée en amont et en aval de la colonne à bulles par un Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS). Ce granulomètre mesure le diamètre de mobilité électrique des nanoparticules à l'aide d'un classifieur de mobilité électrique (DMA TSI 3080) et un compteur de noyaux de condensation (CPC TSI 3776). L'efficacité de collecte pour chaque classe granulométrique est déterminée à partir des mesures de concentration réalisées en amont et en aval de la colonne à bulles selon la norme NF EN779. **La collecte** des nanoparticules a lieu dans une colonne à bulles dont les principales caractéristiques peuvent être contrôlées (hauteur de liquide, diamètre des bulles, débit d'air en entrée de la colonne).

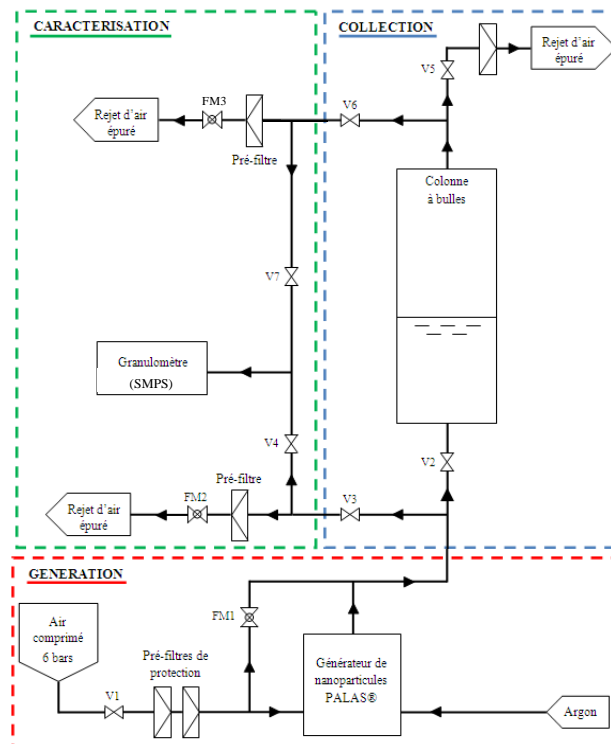


Figure 1. Schéma du banc d'essais OCEAN.

La formation des bulles s'effectue au niveau d'une plaque en inox perforée (de 16 orifices de 500 µm de diamètre). Le choix du liquide de collecte s'est orienté vers de l'eau déminéralisée de façon à éviter la formation de particules secondaires lors de l'explosion des bulles à la surface du liquide de collecte.

### 3. Mise en place du protocole expérimental

Etant données les fortes concentrations de particules générées (de l'ordre de  $5.10^6$  particules par  $cm^3$ ) et les faibles vitesses d'écoulement au sein de la colonne à bulles vide, l'aérosol initial est dilué afin d'obtenir des concentrations plus faibles et ainsi réduire la probabilité d'agglomération au sein de la colonne vide ce qui fausserait les calculs d'efficacité. Néanmoins, pour un facteur de dilution important, le nombre de particules en sortie de colonne à bulles ( $C_{f,i}$ ) devient trop faible pour être détecté par le granulomètre SMPS ce qui rend le calcul de l'efficacité de collecte impossible. Il faut donc trouver un compromis entre une forte dilution qui évite le phénomène d'agglomération mais rend le comptage des particules ultrafines difficile, et une faible dilution qui peut s'avérer insuffisante pour totalement faire disparaître l'agglomération. Afin de prendre en compte les variations de la concentration en amont et d'anticiper un biais sur la mesure d'efficacité, nous allons déterminer l'efficacité de collecte selon la relation ci-dessous (Equation 1) (Figure 2A).

#### Équation 1.

$$\text{Efficacité du liquide} = \frac{\text{Efficacité de la colonne pleine} - \text{Efficacité de la colonne vide}}{1 - \text{Efficacité de la colonne vide}}$$

Où

$$\text{Efficacité de la colonne vide} = 1 - \frac{C_{f,i}}{C_{0,i}} \quad \text{Efficacité de la colonne pleine} = 1 - \frac{C_{f,j}}{C_{0,j}}$$

La mise en application de ce protocole expérimental, qui permet de mesurer uniquement l'efficacité de collecte due au liquide, a révélé une diminution de l'efficacité de collecte entre 6 et 20 nm (Figure 2B) vraisemblablement due à une diminution de l'efficacité de collecte par le mécanisme diffusif ce qui est cohérent avec les résultats de Pich et Schutz (Pich and Schütz, 1991).

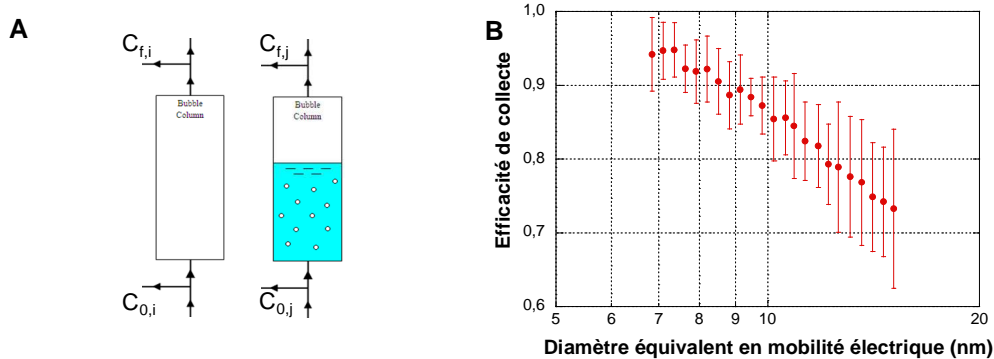


Figure 2. Protocole expérimental. (A) Détermination des concentrations en particules initiale et finale (B) Efficacité fractionnelle de collecte (pour une hauteur d'eau de 20 cm et un débit d'air de 4L/min)

Une fois la mise en place du protocole de mesure de l'efficacité de collecte de la colonne à bulles effectuée, nous nous sommes intéressés à l'optimisation de ce séparateur dont les performances restent inférieures à celles de média fibreux.

### 4. Influence des paramètres opératoires d'une colonne à bulles sur l'efficacité de collecte

Des paramètres, tels que la hauteur du liquide de piégeage et la vitesse de jet de l'aérosol à l'entrée de la colonne, ont été testés afin d'observer leur influence sur l'efficacité de collecte d'une colonne à bulles (38 cm de hauteur et 7,8 cm de diamètre). L'objectif de ces mesures est de trouver la configuration de la colonne à bulles qui donne la meilleure efficacité de collecte de particules ultrafines. Les conditions de génération de l'aérosol, la charge électrique de l'aérosol et la nature du liquide de collecte (eau pure) sont restées constantes tout au long des expériences.

Afin de tester l'influence de la hauteur de liquide sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines, des expériences ont été menées à quatre niveaux de liquide de piégeage (5, 10, 20 et 30 cm) et un débit de 4 L/min (soit une vitesse de gaz par orifice de 21,2 m/s). Les résultats montrent que

l'efficacité de collecte de particules ultrafines augmente avec la hauteur de liquide dans la colonne (Figure 3A). Cette observation peut être expliquée par une augmentation du temps de séjour des particules dans la colonne et donc une amélioration du transfert des particules du gaz à la phase liquide (Charvet et al., 2011).

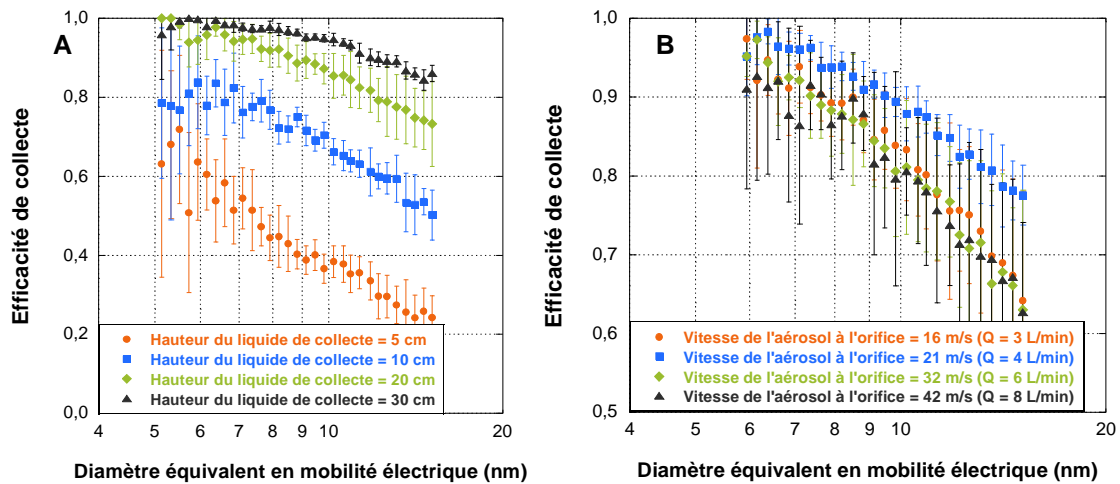


Figure 3. Influence des paramètres opératoires sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. (A) Hauteur du liquide de piégeage (B) Vitesse de jet de l'aérosol

Afin d'observer l'effet de la vitesse de jet de l'aérosol à l'entrée de la colonne à bulles, des expériences avec une hauteur du liquide de piégeage de 20 cm et différents débits de l'aérosol (3, 4, 6, 8 L/min) ont été testées (Figure 3B). Nous avons observé au moyen d'une caméra rapide, que la taille des bulles dépend directement de la vitesse de gaz à la sortie des orifices. Malgré cela, la différence entre les efficacités mesurées aux quatre vitesses ne présente pas une variation significative. A partir de ces résultats, il est donc difficile de conclure sur l'influence de la vitesse sur l'efficacité de collecte des particules dans une colonne à bulles.

## 5. Optimisation des performances d'une colonne à bulles

Afin d'optimiser les performances de la colonne à bulles, encore inférieures à celles des médias fibreux, nous avons testé l'influence de la présence d'un garnissage dans la colonne à bulles sur les performances de celle-ci. Des paramètres tels que la taille des billes du garnissage et la hauteur du lit granulaire ont été testés pour un débit de 4 L/min et pour une hauteur de liquide de 20 cm.

### 5.1. Influence de la présence d'un lit granulaire immergé

La figure 4 compare les performances de la colonne à bulles dans 3 conditions opératoires différentes: (a) Colonne à bulles, soit 20 cm d'eau pure, (b) Lit granulaire immergé, soit 20 cm de billes dans 20 cm d'eau pure et (c) Lit granulaire, soit 20 cm de billes.

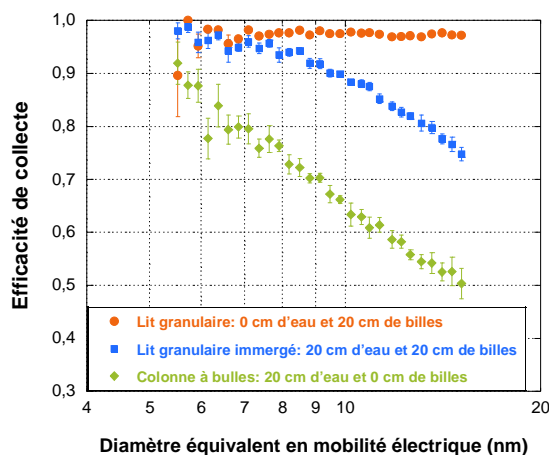


Figure 4. Comparaison des efficacités de collecte des différentes configurations d'une colonne à bulles ( $Q = 4$  L/min)

Nous pouvons noter une amélioration de l'efficacité de collecte des particules ultrafines lors du passage de la colonne à bulles au lit granulaire immergé. Cette amélioration des performances par l'ajout d'un garnissage ne permet néanmoins pas d'atteindre l'efficacité de collecte d'un lit granulaire composé de 20 cm de billes. Cependant, l'utilisation d'un lit granulaire (non immergé) aboutirait aux mêmes problèmes qu'un média fibreux, à savoir le colmatage progressif et la nécessité de décolmater régulièrement le lit pour abaisser la perte de charge. Par contre, l'utilisation d'un garnissage immergé dans la colonne à bulles augmente les performances de cette dernière tout en permettant la collecte des particules ultrafines dans la phase liquide, facilitant ainsi la régénération du lit par un simple changement du liquide de collecte. Afin d'augmenter les performances de ce système, une étude spécifique a été réalisée pour étudier l'influence du diamètre et de la densité des billes composant le garnissage et de la hauteur du lit immergé.

## 5.2. Influence de la taille des billes d'un lit granulaire immergé

Des billes de différentes tailles ont été testées afin d'observer leur influence sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. La figure 5 présente les efficacités de collecte de lits granulaires immergés composés de billes de verre de 1,5, 2,75 et 4,7 mm de diamètre déterminées à un débit de 4 L/min pour une hauteur de liquide de 20 cm.

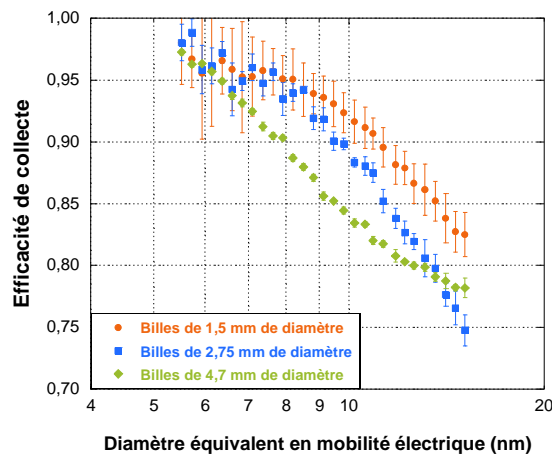


Figure 5. Efficacité de 20 cm lit granulaire immergé pour différentes tailles de billes ( $Q = 4 \text{ L/min}$ )

Ces expériences montrent qu'une diminution du diamètre des billes de verre entraîne une légère augmentation de l'efficacité de collecte. Ce phénomène pourrait s'expliquer par la présence de pores plus petits au sein du lit granulaire composé de billes de 1,5 mm de diamètre et donc par la formation de bulles d'air plus « écrasées » ce qui faciliterait la collecte des particules ultrafines dans les bulles au cours de leur ascension dans la colonne. Fort de ces observations, des expériences ont également été réalisées avec un lit granulaire immergé composé de billes de 0,7 mm de diamètre mais l'importante diminution de la masse du lit de billes entraîne un soulèvement du lit et la création de passages préférentiels (Figure 6).

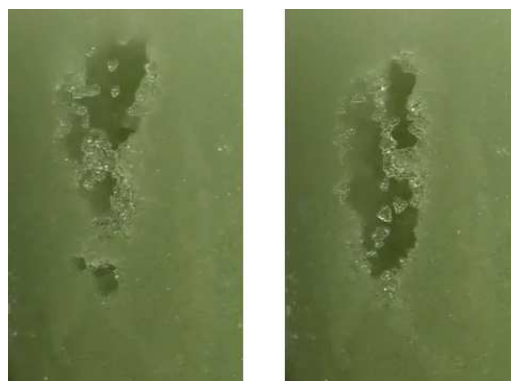
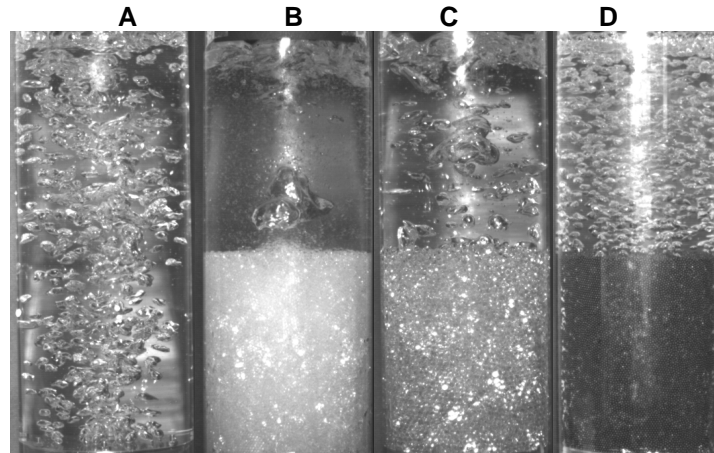


Figure 6. Passages préférentiels dans un lit granulaire immergé (billes de 0,7 mm de diamètre)

Ces passages préférentiels de plusieurs centimètres engendrent la coalescence des bulles et sont donc à l'origine d'une diminution drastique de l'efficacité de collecte. Ce phénomène n'a pas été observé pour les expériences réalisées avec des billes de masse volumique plus importante.

### 5.3. Influence de la hauteur du garnissage

Après avoir mis en évidence l'influence de la présence d'un garnissage immergé et de la taille des billes de celui-ci, nous nous sommes intéressés à l'influence de la hauteur du lit granulaire. Les expériences ont été menées à des débits de 4 L/min, pour une hauteur totale d'eau distillée de 20 cm et une hauteur variable de billes dans la colonne. L'objectif de cette partie est d'évaluer la capacité de quelques centimètres de billes à générer des bulles relativement fines (plus petites qu'en sortie de la plaque perforée) de façon à optimiser les performances de collecte des particules ultrafines de la colonne.



**Figure 7. Visualisation des bulles lors des différentes conditions opératoires d'une colonne à bulles. (A) 20 cm d'eau pure (B) 10 cm de billes de verre de 1,5 mm de diamètre dans 20 cm d'eau pure (C) 10 cm de billes de verre de 2,75 mm de diamètre dans 20 cm d'eau pure (D) 10 cm de billes de plomb de 1 mm de diamètre dans 20 cm d'eau pure**

Des visualisations à la caméra rapide (Phantom V9) ont permis de mesurer la taille des bulles en sortie du lit granulaire pour les différentes conditions opératoires. Il est notamment observable (Figure 7), que l'utilisation d'un lit de billes de verre engendre un déplacement des celles-ci lors du passage des bulles et non une fragmentation des bulles, comme escompté. Ce phénomène est d'autant plus accentué que le diamètre des billes (et donc leur masse) est petite. Par contre, le lit constitué de billes de faible diamètre et de masse volumique importante forme des bulles plus fines que celles générées par la plaque perforée (12 orifices de 500  $\mu\text{m}$  de diamètre) et plus fines également que celles obtenues avec le garnissage composé de billes de verre. Ce comportement, peut s'expliquer par la masse volumique plus importante des billes, laquelle évite la formation des passages préférentiels et entraîne la formation de bulles très fines. Par conséquent, la présence d'un lit de fines billes denses de faible épaisseur dans une colonne à bulles s'avère plus efficace qu'une colonne à bulles seule ou qu'un lit granulaire de billes de verre immergé sur la totalité de la hauteur de la colonne.

Afin de comprendre l'influence de la taille des bulles sur l'efficacité de collecte, nous avons mesuré le diamètre des bulles pour différentes hauteurs de lit granulaires composés de billes de verre (2,75 mm de diamètre) et de billes de plomb (1 mm de diamètre), pour une hauteur totale d'eau pure de 20 cm et pour un débit de 4 L/min. La figure 8A, permet de conclure que l'augmentation de la hauteur du lit granulaire diminue la taille des bulles. Réduire la taille des bulles permet de diminuer leur vitesse ascensionnelle et donc d'augmenter le temps de séjour des bulles dans la colonne (Figure 8B). Par conséquent, quelques centimètres de garnissage de billes de plomb favorisent la formation de bulles relativement fines et optimisent l'efficacité de collecte de la colonne (Figure 8C).

Cette expérience nous a permis de déduire que le paramètre qui exerce la plus forte influence sur l'efficacité de collecte de particules ultrafines est le temps de séjour, lequel dépend directement de la taille de bulles.

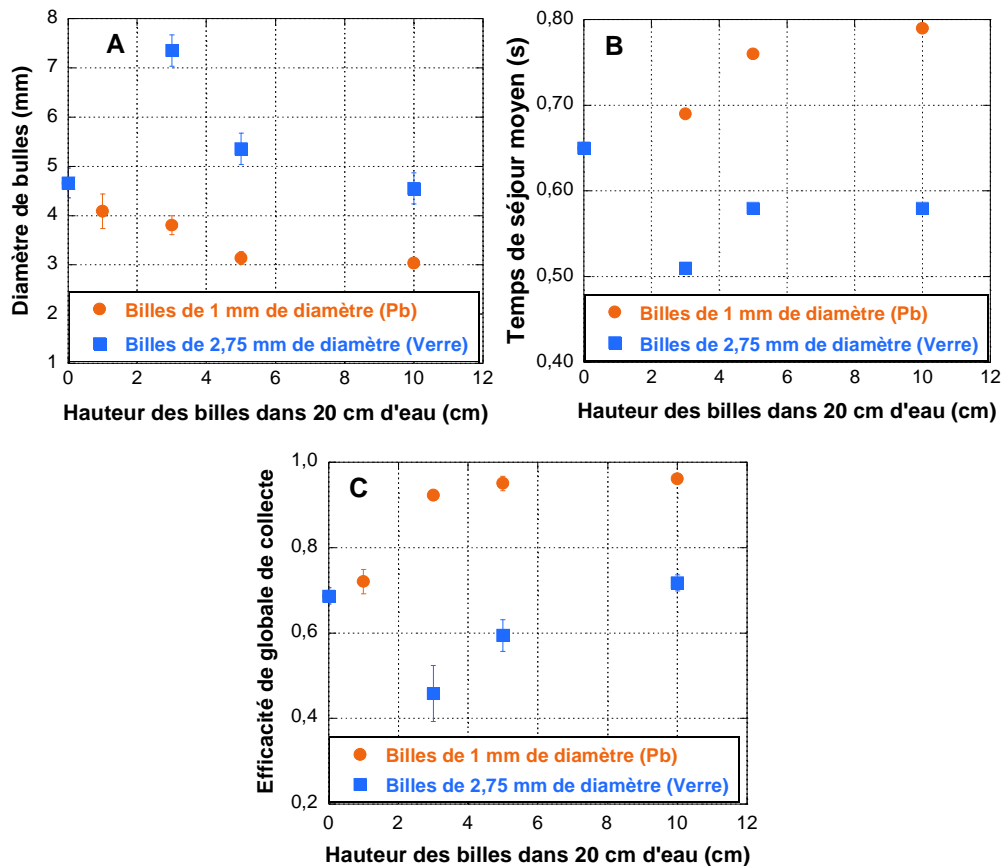


Figure 8. Influence de la hauteur du lit granulaire pour des billes de nature et diamètre différents ( $Q = 4 \text{ L/min}$ ). (A) Taille des bulles (B) Temps de séjour (C) Efficacité globale de collecte

## 6. Conclusion et perspectives

Au cours de cette étude, nous avons mis en place un banc d'essais et un protocole expérimental afin d'étudier l'influence du temps de séjour de l'aérosol dans la colonne à bulles, le régime de bullage et de la taille des bulles sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. Les expériences montrent que, pour une même plaque perforée et une même vitesse du fluide, l'efficacité globale de collecte de la colonne augmente avec le niveau du liquide de piégeage (de 43 % pour 5 cm d'eau à 90 % pour 20 cm (diamètre des particules compris entre 5 et 15 nm)). Ce comportement s'explique par une augmentation du temps de séjour de l'aérosol dans la colonne ce qui augmente la probabilité de collecte des particules par diffusion. Par ailleurs, les valeurs d'efficacité obtenues pour différentes vitesses de gaz à l'orifice ne montrent pas une tendance bien définie en raison du changement de régime de bullage: d'un bullage homogène vers un régime de jet pour les vitesses les plus fortes. Dans un second temps, dans une optique d'optimisation des performances de la colonne, l'ajout d'un garnissage a été étudié. Les conclusions qui en ressortent montrent que pour les billes de faible masse volumique (billes en verre) seule une hauteur importante de garnissage (configuration de lit granulaire immergé) permet d'augmenter les performances de la colonne à bulles. Des expériences avec des billes de masse volumique plus importante ont permis d'obtenir des efficacités élevées même pour de faibles hauteurs de garnissage, et avec une influence négligeable du débit de l'aérosol.

Le développement d'une colonne à bulles capable de traiter plusieurs centaines de mètres cube par heure est actuellement en cours de dimensionnement afin de vérifier la pertinence (en termes de dépense énergétique et d'efficacité de collecte) de ce procédé de séparation à l'échelle industrielle. Cette colonne, qui devra être capable de passer d'une configuration de colonne à bulles, à celle d'un lit granulaire immergé voire d'un lit granulaire arrosé, sera notamment testée avec des concentrations particulaires élevées et sur des périodes plus importantes de façon à étudier ses performances au cours du colmatage.

## Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier l'Agence de l'Environnement et de la Maitrise de l'Energie (ADEME) pour le support financier du projet Aténa (Amélioration du traitement des émissions de nanoparticules: convention n°11-81-C0084)

## Références

Bandyopadhyay, A., Biswas, M.N., 2006. Fly-Ash Scrubbing in a Tapered Bubble Column Scrubber. *Process Safety and Environmental Protection* 84, 54–62.

Bémer, D., Régnier, R., Subra, I., Sutter, B., Lecler, M.T., Morele, Y., 2010. Ultrafine Particles Emitted by Flame and Electric Arc Guns for Thermal Spraying of Metals. *Ann Occup Hyg* 54, 607–614.

Charvet, A., Bardin-Monnier, N., Thomas, D., 2011. Can bubble columns be an alternative to fibrous filters for nanoparticles collection? *Journal of Hazardous Materials* 195, 432–439.

Koch, D., Weber, A.P., 2012. Separation of gas-borne nanoparticles in bubble columns. *Journal of Aerosol Science* 53, 61–75.

Meikap, B.C., Biswas, M.N., 2004. Fly-ash removal efficiency in a modified multi-stage bubble column scrubber. *Separation and Purification Technology* 36, 177–190.

Mouret, G., Thomas, D., Chazelet, S., Appert-Collin, J.-C., Bémer, D., 2009. Penetration of nanoparticles through fibrous filters perforated with defined pinholes. *Journal of Aerosol Science* 40, 762–775.

Pich, J., Schütz, W., 1991. On the theory of particle deposition in rising gas bubbles: The absorption minimum. *Journal of Aerosol Science* 22, 267–272.