

---

# Techniques d'Echantillonnage et d'Analyse Granulométrique des Brouillards

Michel J.E. Gauthier<sup>1</sup> et Conrad East<sup>2</sup>

*Centre de Recherche en Sciences de l'Environnement  
Université du Québec à Montréal<sup>3</sup>*

[Manuscrit reçu le 19 décembre 1974]

---

## RÉSUMÉ

Dans le cadre d'une étude sur les propriétés physiques et chimiques des brouillards industriels, ainsi que sur leur potentiel nocif au point de vue biologique, on étudie les différentes méthodes d'échantillonnage et d'analyse granulométrique des brouillards, méthodes gravimétriques, optiques et

par impact. Si l'on veut tenir compte de la présence des particules solides en suspension dans les gouttelettes, la seule méthode fiable est encore l'impact sur une surface amorphe qui donne un enregistrement visuel permanent.

---

## 1 Introduction

Au cours d'une recherche antérieure, East a souvent observé au-dessus de Montréal la présence d'un brouillard dans des conditions où aucun brouillard ne couvrait la région avoisinante. Ce brouillard artificiel originait des cheminées et des tours de refroidissement du vaste complexe industriel sis dans l'extrémité nord-est de l'île de Montréal. Par vents soufflant du nord-est, ce brouillard s'étendait à la grandeur de l'île de Montréal recouvrant ainsi un secteur fortement peuplé.

Comme ces brouillards surviennent assez fréquemment, spécialement au début de l'hiver, qu'ils sont probablement acides et peuvent contenir certaines substances plus ou moins toxiques, une étude fut entreprise pour en étudier les propriétés physiques et chimiques, spécialement de part et d'autre du seuil des particules respirables aux environs du diamètre de 5  $\mu\text{m}$ .

Ce premier article fait rapport des techniques d'échantillonnage et d'analyse granulométrique des brouillards et du choix qui fut fait, eu égard aux objectifs. Notons que le brouillard à étudier se forme dans une atmosphère riche en particules en suspension: il faut donc utiliser une méthode qui puisse différencier entre les gouttelettes et les particules en suspension.

<sup>1</sup>Affiliation actuelle: Université Nationale du Rwanda, B.P. 117, Butare, Rwanda, Afrique Centrale.

<sup>2</sup>Auteur à qui il faut adresser toute correspondance.

<sup>3</sup>B.P. 8888, Montréal, Québec H3C 3P8

## 2 Méthodes Gravimétriques

Les méthodes gravimétriques à grand volume d'échantillonnage utilisées principalement pour les particules solides en suspension ("Hi-Vol" et impacteur Andersen, par exemple), mais aussi pour les gouttelettes de brouillard ou de nuage, consistent à récolter les gouttelettes de brouillard sur un papier filtre qu'on pèse avant et après l'échantillonnage. Avec cette méthode, il survient généralement des pertes par évaporation qui nécessitent l'analyse immédiate de l'échantillonnage. L'eau recueillie sur le filtre peut même être entraînée par l'écoulement de l'air pendant l'échantillonnage.

Par contre, si on suppose, comme l'ont fait Ludwig et Robinson (1970), que l'eau seule s'évapore et que toute substance dans les gouttelettes reste sur les filtres, on peut faire quand même une analyse de la répartition des constituants du brouillard selon le diamètre des gouttelettes. On n'obtiendra pas cependant une répartition de la quantité d'eau en fonction du diamètre.

## 3 Techniques photographiques

Ces méthodes consistent à photographier directement les gouttelettes de brouillard qui passent dans un volume très restreint dans le champ d'un microscope. Si on connaît le volume d'observation, on peut calculer la densité des gouttelettes. En général, cette méthode n'est applicable que pour des particules ou des gouttelettes assez grosses, bien que Phan-Cong et Dinh-Van (1973) aient réussi à mesurer par cette méthode les coefficients de coagulation de gouttelettes aussi petites que  $1 \mu\text{m}$ . Mais ceci fut réalisé en laboratoire, non dans le milieu naturel.

## 4 Techniques optiques

Les techniques optiques consistent généralement à mesurer la lumière diffusée par une particule individuelle (gouttelette ou particule solide) qui passe devant un pinceau de lumière. L'intensité de la lumière diffusée est proportionnelle à la grosseur de la particule. Les aspects théoriques et pratiques de ces techniques ont été étudiées depuis plusieurs années avec une application presque exclusive aux particules en suspension. D'ailleurs la théorie suppose toujours qu'on a affaire à un aérosol d'une composition uniforme puisque la diffusion de la lumière dépend aussi de l'indice de réfraction des particules. La technique a cependant l'avantage de compter les particules une à une et d'observer assez facilement les particules sub-microniques d'un diamètre aussi bas que  $0.1 \mu\text{m}$ .

Ces compteurs peuvent donner des résultats assez précis mais dans les conditions d'humidité relative très élevée que nous devons rencontrer, il y avait possibilité de condensation sur les parois du système optique. Pourtant, les fabricants affirment que ces appareils sont utilisés dans des chambres à brouillard (cloud chambers) sans problème. Cette technique n'est pas pratique pour nous, parce que nous voulons voir non seulement les variations dans la granulométrie des brouillards, mais aussi les concentrations de particules solides dans les gouttelettes.

Lundgren et Cooper (1969) ont étudié l'effet de l'humidité sur les méthodes de diffusion optique et concluent que la quantité de lumière diffusée par un aérosol pouvait commencer à augmenter avec l'humidité relative à un niveau aussi bas que 50% selon la fraction hygroscopique de l'aérosol. Les échantillons d'aérosols peuvent être comparés de façon plus valable s'ils sont secs ou s'ils sont séchés à une humidité relative assez basse, environ 30%. Les compteurs optiques sont affectés par l'humidité de sorte que la granulométrie de particules hygroscopiques ne sera pas la même à différentes humidités. Nous ne pouvons pas chauffer le brouillard pour résoudre le problème parce que nous voulons justement connaître la granulométrie des gouttelettes d'eau.

## **5 Principe des méthodes d'impact**

Le nom de la méthode est bien descriptif en ce sens qu'on provoque un impact des particules de l'aérosol sur une surface qu'on observera ensuite pour voir ou bien la particule elle-même si on a pu la garder intacte ou bien une trace de l'impact. Cette trace pourrait être une tache sur un papier, une empreinte sur un film, un cratère sur une surface gélatineuse, etc. Il faut produire un étalonnage ou établir une corrélation quelconque entre les propriétés de la trace et celles de la particule qui l'a produite. Il existe une exception à cette description générale: il s'agit de la méthode gravimétrique qui est quand même une méthode d'impact, mais qui ne permet pas de compter les gouttelettes une par une.

La technologie se divise en deux parties: la conception d'un impacteur et la préparation de la surface d'impact. Ces deux parties ne sont pas indépendantes mais on peut les étudier séparément.

## **6 Impacteurs**

Un impacteur sert à échantillonner l'aérosol et cet échantillon doit être représentatif. Les propriétés hydrodynamiques d'un aérosol varient selon le diamètre des particules et il faut prendre certaines précautions pour échantillonner aussi efficacement les petites et les grandes particules. On dit que l'échantillonnage doit être isocinétique.

On utilise souvent plusieurs étages, comme dans l'impacteur à cascades, qui récolte d'abord les plus grosses particules par des impacts à faible vitesse, puis successivement des particules plus petites à des vitesses de plus en plus grandes. Le pionnier des impacteurs à cascades est sûrement celui de May (1945).

## **7 Surface d'impact**

On utilise différentes surfaces selon le type d'impacteur, les facilités disponibles au moment de l'échantillonnage, la possibilité de préparer les plaques d'avance, la nécessité de conserver l'échantillon et l'analyse à faire. On peut ainsi distinguer deux types d'analyses importants, l'analyse physique et l'analyse chimique, c'est-à-dire la granulométrie et l'identification des constituants, acide sulfurique, sulfates, chlorures, etc.

Dans les méthodes gravimétriques, on doit utiliser des plaques légères, pour

des raisons évidentes, et inertes, spécialement si on veut faire une analyse chimique de l'échantillon. Le teflon a été utilisé pour cela et semble le meilleur matériau.

Pour faire la granulométrie d'un aérosol liquide, on utilise des surfaces visqueuses comme de la graisse ou de l'huile si on veut emprisonner les gouttelettes ou une substance amorphe, comme de la gélatine, du polyvynil ou de la lanoline, si on veut obtenir des impacts de gouttelettes. Différentes substances ont été utilisées et les plus importantes seront analysées ici. Les méthodes les plus répandues semblent utiliser la gélatine et le formvar. Les efficacités de collection de certaines méthodes apparaissent assez pauvres pour les gouttelettes de diamètre inférieur à  $4 \mu\text{m}$ , où certains auteurs ont démontré une mauvaise corrélation de la distribution avec la visibilité.

Plusieurs chercheurs ont analysé les propriétés de quelques surfaces d'impact pour la granulométrie des gouttelettes d'eau de nuages ou de brouillards. Rinehart (1969) a passé en revue un bon nombre de ces travaux dans le cadre d'un programme de recherches sur les brouillards des aéroports.

Dessens (1961) et Godard (1960) ont employé du collargol. Les films de collargol doivent cependant être préparés de 5 à 10 minutes avant d'être utilisés. Phan-Cong (1973) a utilisé aussi du collargol et soutient que ce milieu est plus fiable que la gélatine, en particulier parce que le facteur d'étalement est connu avec plus de précision et qu'il est indépendant du diamètre de la gouttelette. De plus, il semble que des impressions de bonne qualité puissent être obtenues sans l'usage de la microscopie en contraste de phase si on utilise des plaques de collargol fraîchement préparées.

Dans le cas de la gélatine, la surface idéale est la plus mince couche possible de gélatine pure. On peut obtenir une couche pratiquement plane. Tout colorant et vraisemblablement toute substance ajoutée à la gélatine cause des irrégularités au moment de la prise ou de la coagulation et sera donc rejeté. May (1961) et Garland (1971) ont observé la même chose surtout depuis qu'on a des microscopes plus perfectionnés.

Golitzine (1951) et plus tard Pettit (1967) ont utilisé de l'huile (type ESSO SAE 250) sur la plaque de leur impacteur. L'avantage marqué qu'ils ont retenu est que les gouttelettes de brouillard captées par l'huile conservent leur forme et leur volume assez longtemps pour pouvoir être photographiées et analysées plus tard. On mesure donc directement les dimensions des gouttelettes, mais on ne peut pas conserver l'échantillon parce que l'eau s'évapore et on doit nécessairement avoir un équipement assez élaboré, ce qui n'est pas pratique sur le terrain.

Dans notre recherche, la gélatine a été adoptée à cause des avantages suivants: préparation préalable au labo, clarté de l'impact au microscope, permanence des plaques. Avant d'être utilisées dans l'impacteur, les plaques sont systématiquement vérifiées au microscope bien qu'une technique de préparation bien soignée rend cette précaution inutile. Les plaques, une fois soumises à l'impact des gouttelettes, sont ensuite analysées au microscope.

## 8 Facteur d'étalement

Un avantage de la méthode d'impact des gouttelettes d'aérosol sur une surface amorphe qui a été observé par May (1945) est qu'on peut conserver l'échantillon aussi longtemps que l'on veut et qu'on n'a pas besoin de photomicroscope sur le terrain. Par contre, pour relier le diamètre de la trace au diamètre de la gouttelette, on doit connaître le facteur d'étalement des gouttelettes qui est défini comme le rapport du diamètre du cratère sur le diamètre de la gouttelette avant l'impact. Ce facteur est propre à chaque substance et dépend de la viscosité et de la densité de la gouttelette aussi bien que de la surface d'impact.

Quelques chercheurs ont tenté d'évaluer ce facteur d'étalement et les résultats sont plus ou moins concluants.

Schaefer (1962) a estimé à environ 1.25 le facteur d'étalement de gouttelettes d'eau sur du Formvar 15-9E. Okita (1968) a mesuré le facteur d'étalement de gouttelettes d'acide sulfurique sur des plaques de verre recouvertes de silicone. Les gouttelettes ont une forme hémisphérique et il existe un rapport 1.48 entre le diamètre  $d_s$  des particules sur la plaque et leur diamètre  $d_p$  dans l'air. Godard (1959) a mesuré un facteur d'étalement entre 2.2 et 2.5 pour un mélange de collargol et de gélatine dans un rapport 1 à 4.

Liddell et Wootten (1957) ont utilisé un colorant, du Vert de Naphtol B, dans de la gélatine appliquée sur les plaques d'un impacteur à cascades. L'étalonnage de la trace qui reste après l'évaporation d'une gouttelette qui a fait un impact sur la plaque montre que, en moyenne, la trace a un diamètre 2.5 fois plus grand que le diamètre de la gouttelette. La méthode peut servir pour des gouttelettes allant jusqu'à moins de 1  $\mu\text{m}$  de diamètre. Ces auteurs ont utilisé comme méthode étalon, la "méthode absolue" de May (1945), méthode dont la précision a été mise en doute par Reif et Mitchell (1959) dans leur revue des méthodes d'impact.

Plus tard, Labourdique et Piekarski (1970) ont mesuré le facteur d'étalement pour la gélatine colorée et pour la lanoline colorée au Noir Soudan et obtiennent respectivement 1.6 et 1.27. May (1959) a perfectionné la méthode avec la gélatine en éliminant le colorant et en utilisant une mince couche d'environ 1  $\mu\text{m}$  d'épaisseur de gélatine pure en solution aqueuse à 5%. Meszaros (1965) a obtenu une valeur de 1.4 tandis que Garland (1971) a utilisé aussi de la gélatine pure mais a montré la grande supériorité du contraste interférentiel de Nomarski pour observer les cratères laissés par des gouttelettes d'eau pure. Cet auteur utilise un facteur d'étalement de 1.7. Enfin, plus récemment Kumai (1973) et Pettit (communication privée, 1973) ont utilisé un facteur d'étalement de 2.

L'analyse de Rinehart (1969) des méthodes d'impact a été faite sans l'aide du microscope à contraste interférentiel. Il conclut que la gélatine ne peut pas enregistrer d'impacts de très petites gouttelettes. Depuis que Garland (1971) a démontré la grande supériorité du contraste interférentiel sur le contraste de phase pour observer les impacts de gouttelettes, la gélatine est devenue à notre avis la surface la plus pratique. Plusieurs expérimentateurs utilisent

TABLEAU 1. Facteur d'étalement  $d_s/d_a$  de la gouttelette d'eau pour diverses surfaces d'impact. ( $d_s$ , diamètre sur la surface;  $d_a$ , diamètre dans l'air).

Auteur	Surface d'Impact	Facteur d'Etalement
Schaefer (1962)	Formvar	1.25
Godard (1959)	Collargol et gélatine	2.2-2.5
Liddell et Wooten (1959)	Gélatine colorée	2.5
Labourdique et Piekarski (1970)	Gélatine	1.6
Labourdique et Piekarski (1970)	Lanoline colorée	1.27
May (1959)	Gélatine	1.7
Garland (1971)	Gélatine	1.7
Petit (1973)	Gélatine	2
Mészáros (1965)	Gélatine	1.4

actuellement la gélatine bien que les Français semblent préférer en général le collargol.

Le Tableau 1 résume ce qui vient d'être exposé à propos des surfaces d'impact et des facteurs d'étalement.

### 9 Coefficient de captation

Dessens (1961) a conçu un capteur classer de particules à lame unique permettant un captage surveillé et dimensionné de particules. Il a étudié aussi, à l'aide d'un capteur à deux jets spécialement conçu à cet effet, le rendement de captation de ce capteur à lame unique et de l'impacteur à cascades Casella. Pour des gouttelettes de rayon entre 1 et 30  $\mu\text{m}$ , il obtient un rendement qui varie entre 0.7 et 0.8 selon le rayon de la gouttelette. Toutefois le rendement diminue progressivement de 0.7 à 0.6 pour des rayons de 25 à 30  $\mu\text{m}$ .

A notre avis, on devrait tenir compte de ce facteur de rendement, spécialement dans le calcul du contenu en eau du brouillard, là où les grosses gouttelettes ont une contribution très importante. Comme le soutient Dessens (1961) les coefficients de captation ne sont pas connus pour les gouttelettes de rayon inférieur au micron, car les impacteurs ne sont pas construits en vue de l'étude de particules submicroniques; l'observation sur lame de telles particules devient en effet délicate, et il est préférable de lui substituer l'observation après captation sur fils fins.

### 10 Granulométrie

Pour mesurer les impacts de gouttelettes et les classer par grandeur, Patterson et Cawood (1936) ont conçu un graticule. Ils ont fait la revue des méthodes utilisées antérieurement pour la granulométrie des particules de fumée et ont montré qu'aucune n'était fiable. Ils décrivent alors une méthode qui consiste à ramasser des particules de fumée sur une lame par sédimentation tel que décrit par Whytlaw-Gray *et al.* (1936) puis à examiner la lame avec un microscope muni d'un graticule dans l'oculaire. Le graticule contient un rectangle et une série de dix cercles et de dix disques numérotés. Ces derniers apparaissent en superposition dans le champ du microscope et les particules contenues dans le rectangle peuvent être rapidement comparées à l'œil avec les disques et

les cercles pour obtenir leur grosseur. Environ 50 surfaces sont ainsi observées sur chaque lame et on fait la moyenne des résultats. Puisque l'aire du rectangle est connue, le nombre de particules par centimètre cube est facile à calculer. La méthode est applicable à des particules plus grandes que  $0.4 \mu\text{m}$  et à des particules non hygroscopiques d'assez grand parcours moyen.

## 11 Conclusions

A la suite de cette revue des techniques d'échantillonnage et d'analyse granulométrique des brouillards, nous avons porté notre choix sur les techniques suivantes:

- 1) Méthode d'impact avec impacteur à cascades Casella;
- 2) Lamelles de verre recouvertes d'une mince couche de gélatine pure pour obtenir des empreintes permanentes des gouttelettes. Les lamelles, préalablement à tout usage, sont examinées au microscope, et seules celles qui offrent une surface homogène sont acceptées;
- 3) Adoption d'un facteur d'étalement de 2;
- 4) Comptage de gouttelettes au microscope à contraste interférentiel de Nomarski avec le graticule May-Porton.

Cette méthode sera utilisée dans l'étude de brouillards qui paraîtra dans un article subséquent.

---

## References

- DESSENS, J., 1961: Un capteur classeur de particules à lame unique. *Bull. Obs. Puy-de-Dôme*, No. 1, 1-13.
- GARLAND, J.A., 1971: Some fog droplet size distributions obtained by an impaction method. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **97**, 483-494.
- GODARD, L., 1959: Procédé pour déterminer les dimensions des gouttelettes de brouillard ou de nuages. *Bull. Obs. Puy-de-Dôme*, No. 1, 11-13.
- GODARD, S., 1960: Mesure des gouttelettes de nuage avec un film de collargol. *Bull. Obs. Puy-de-Dôme*, No. 2, 43-46.
- GOLITZINE, N., 1951: Method for measuring the size of water droplets in clouds, fogs and sprays. National Aeronautical Establishment, Note 6 (ME-177), Ottawa.
- KUMAI, M., 1973: Arctic fog droplet size distribution and its effect on light attenuation. *J. Atmos. Sci.*, **30**, 635-643.
- LABOURDIQUE, D. et PIEKARSKI, S., 1970: Etude d'une méthode de captation de petites gouttes d'eau et mesure de leur diamètre. *J. Rech. Atmos.*, 129-138.
- LIDDELL, H.F. et WOOTTEN, N.W., 1957: The detection and measurements of water droplets. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **83**, 263-368.
- LUDWIG, F.L. et ROBINSON, E., 1970: Observations of aerosols and droplets in California stratus. *Tellus*, **22**, 94-105.
- LUNDGREN, D.A. et COOPER, D.W., 1969: Effect of humidity on light-scattering methods of measuring particle concentration. *J. Air Poll. Control. Assoc.*, **19**, 243-247.
- MAY, K.R., 1945: The cascade impactor: an instrument for sampling coarse aerosols. *J. Sci. Instruments*, **22**, 187-195.
- MAY, K.R., 1959: Detecting volatile airborne droplets. *Nature (London)*, **183**, 742-743.
- MAY, K.R., 1961: Fog-droplet sampling using a modified impactor technique. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, **87**, 535-548.
- MESZAROS, A., 1965: Concentration et distribution dimensionnelle des gouttelettes de brouillards atmosphériques. *J. Rech. Atmos.*, No. 9, 53-64.

- OKITA, T., 1968: Concentration of sulfate and other inorganic materials in fog and cloud water and in aerosol. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **46**, 120-127.
- PATTERSON, H.S. et CAWOOD, W., 1936: The determination of size distribution in smokes. *Trans. Faraday Soc.*, **32**, 1084-1088.
- PETTIT, D.G., 1967: Airborne Instrumentation for a Cloud Physics Research Project. National Research Council of Canada, Aeronautical Report LR-490, Ottawa.
- PHAN-CONG et DINH-VAN, P., 1973: Direct measurement of coalescence efficiency and frequency of small water droplets in an electric field. *Tellus*, **25**, 63-68.
- REIF, A.E. et MITCHELL, C., 1959: Size analysis of water aerosols. *Ann. Allergy*, **17**, 157-172.
- RINEHART, G.S., 1969: Fog drop size distributions - Measurement methods and evaluation. Atmospheric Sciences Lab., White Sands Missile Range, New Mexico, Rep. No. ECOM-5247.
- SCHAEFER, V.J., 1962: The vapor method for making replicas of liquid and solid aerosols. *J. Appl. Meteorol.*, **1**, 413-418.
- WHYTLAW-GRAY, R., CAWOOD, W. et PATTERSON, H.S., 1936: A sedimentation method of finding the number of particles in smokes. *Trans. Faraday Soc.*, **32**, 1055.
-