Pour citer cet article : Belut, E. et al. (2018), NANOCOAG, un banc de caractérisation de l'évolution d'un aérosol de nanoparticules par auto-agrégation et agrégation croisée, Congrès Français sur les Aérosols 2018, Paris

NANOCOAG, UN BANC DE CARACTERISATION DE L'EVOLUTION D'UN AEROSOL DE NANOPARTICULES PAR AUTO-AGREGATION ET AGREGATION CROISEE

E. Belut[1], J. Klingler[1], R. Guichard*[1], V. Matera[1], E. Pardieu[1], J.M. Elcabache[1]

[1]INRS, 1 rue du Morvan, F-54500 Vandoeuvre, France
*Courriel de l'orateur : romain.guichard@inrs.fr

TITLE

NANOCOAG, an experimental facility to characterize the evolution of an aerosol of nanoparticles undergoing self-aggregation or crossed aggregation

ABSTRACT

The particle size distribution (PSD) of a concentrated aerosol of nanoparticles evolves rapidly through self-aggregation or crossed aggregation (corresponding to the aggregation with another preexisting aerosol). The NANOCOAG facility is designed to study these phenomena in steady-state regime, the state of the aerosol (PSD and composition) depending only on the position in space. This allows obtaining the space-resolved properties of the aerosols, i.e. its PSD and its size-resolved chemical composition. Hence, the phenomenon of particle size-dependent contamination can be documented and data for the validation of exposure models can be obtained. We here present the experimental facility and some first results, together with some application examples.

RESUME

La granulométrie d'un aérosol de nanoparticules concentré évolue rapidement par auto-agrégation et agrégation avec l'aérosol ambiant: on parle dans ce dernier cas d'agrégation croisée. Le banc d'essai NANOCOAG permet d'étudier ce phénomène en régime établi, l'état de l'aérosol (granulométrie, composition) ne variant que spatialement dans l'enceinte d'essai. Ceci permet de réaliser des cartographies de l'état de l'aérosol, en termes de distribution granulométrique et de composition chimique résolue en taille. Le phénomène de contamination du spectre granulométrique peut ainsi être mis en évidence, et des données de validation pour des modèles d'exposition peuvent être obtenues. Cette communication présente les premiers résultats obtenus et quelques exemples d'application qui en découlent.

KEYWORDS: nanoparticles, aerosol, aggregation, size-resolved composition **MOTS-CLÉS :** nanoparticules, aérosols, agrégation, composition résolue en taille

1. INTRODUCTION

Dans l'air intérieur, la granulométrie d'un aérosol de nanoparticules évolue rapidement par auto-agrégation et agrégation avec l'aérosol ambiant, ainsi que par transport et dépôt sur les parois des locaux. Ces phénomènes physiques peuvent avoir d'importantes conséquences du point de vue de l'hygiène industrielle dans le cas de nanoparticules présentant un risque sanitaire par inhalation ou contact. Dans ce contexte, la modélisation numérique du comportement d'un nano-aérosol constitue un outil précieux pour évaluer le risque puis pour le maîtriser. Les études antérieures menées à l'INRS (Guichard, Tanière, Belut, & Rimbert, 2014), ont conduit à développer un modèle permettant de prédire l'évolution spatio-temporelle d'un aérosol de nanoparticules dans un local de travail, sous l'effet du transport convectif, du dépôt, de l'agrégation, de la diffusion brownienne et turbulente, et des mécanismes inertiels (déviation, etc.). Pour valider ce modèle, le banc d'essai NANOCOAG a été conçu et exploité. Grace à l'injection continue et dans des conditions stabilisées d'aérosols d'essai dans une enceinte, ce banc crée un état stationnaire pour l'aérosol dont les propriétés (concentration, distribution granulométrique) n'évoluent alors plus que spatialement. Cette situation, associée à une caractérisation fine des écoulements d'air et de la turbulence dans l'enceinte, permet la création de jeux de données pour valider des modèles numériques prédictifs, en fournissant notamment des données résolues dans l'espace. Le banc d'essai permet également d'étudier la problématique de l'agrégation croisée des aérosols, que l'on rencontre par exemple lorsqu'un aérosol nanométrique polluant se mélange avec l'aérosol atmosphérique ambiant : par agrégation, le polluant nanométrique se répartit alors sur l'ensemble du spectre granulométrique. Le banc Nanocoag permet d'investiguer expérimentalement de quelle manière cette répartition se fait et dans quelle proportion. Dans cette communication nous présentons le dispositif expérimental ainsi que ses premiers résultats. Ces premières données concernent l'auto-agrégation de 2 aérosols ainsi que l'agrégation croisée de 2 aérosols de composition différente.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12552

2. MATÉRIELS ET MÉTHODES

2.1. Chambre d'agrégation

Le banc d'essai est schématisé sur les Figure 1 et Figure 2. Il consiste en une chambre d'acier étanche et parallélépipédique de dimensions internes 800x400x400mm. Un débit constant d'air chargé en aérosol est injecté par un ou deux orifices circulaires (diamètre interne 40mm) sur une des petites faces du parallélépipède. Les centres de ces orifices sont placés sur l'axe de symétrie vertical de ces faces et sont distants de 55mm depuis le haut ou le bas de la face. L'air est évacué par un orifice identique situé en bas de la face opposée, toujours à 55mm du fond de l'enceinte. Le profil de vitesse d'air au niveau des entrées est parfaitement établi grâce à une longueur d'établissement suffisante en amont et à une grille de diffusion. L'air entrant est tout d'abord totalement filtré puis chargé en particules à l'aide d'un générateur d'aérosol choisi suivant le type de particules étudié. L'air est évacué hors de l'enceinte après filtration et un contrôleur de pression permet de maintenir l'enceinte en dépression par rapport au laboratoire (-200Pa), afin d'éviter les fuites de particules potentiellement nocives dans le laboratoire. L'ensemble du banc d'essai est conducteur et raccordé à la terre pour limiter l'effet des charges électrostatiques sur le transport et le dépôt des aérosols.

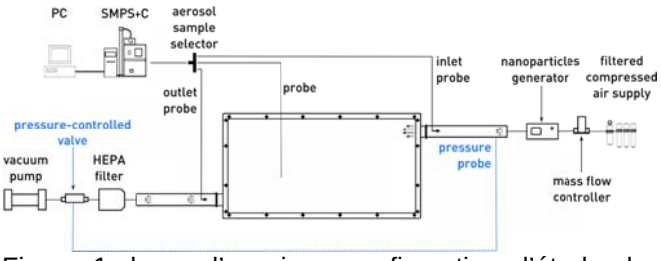

Figure 1: banc d'essai en configuration d'étude de l'évolution d'un aérosol par auto-agrégation

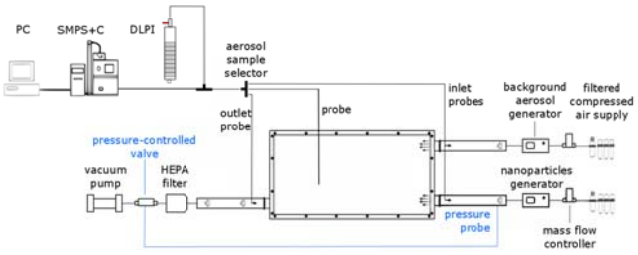

Figure 2: banc d'essai en configuration d'étude de l'évolution par agrégation croisée de 2 aérosols

2.2. Génération des aérosols d'essai

Pour les expérimentations déjà réalisées, deux types de générateur d'aérosol ont été utilisés. Le premier générateur d'aérosol est un nébuliseur PALAS AGK 2000 alimenté avec une solution de l'élément constitutif des aérosols à générer (NaCl, $ZnSO_4$ par exemple). L'aérosol obtenu en sortie de nébuliseur est mélangé avec de l'air sec puis transite dans un sécheur d'aérosol par diffusion, afin d'obtenir une humidité relative suffisamment basse pour éviter toute condensation ultérieure. Le second générateur produit des particules par électrocorrosion (PALAS GFG 1000). La nature des électrodes est choisie suivant la composition de l'aérosol à générer (cuivre, argent). Dans tous les cas des contrôleurs de débit massique sont utilisés pour garantir les débits de gaz porteur utilisés (Bronkhorst EL Flow). L'incertitude sur les débits d'air est donc inférieure à 0.75%. Pendant les phases d'expérimentation, la température était de 20°C±1°C et la pression ambiante de 980±10hPa. Dans ces conditions, l'écoulement dans les conduits d'entrée des aérosols est laminaire ($Re_D \in [1100,1500]$, D étant le diamètre des conduits), mais l'écoulement dans la chambre est turbulent ($Re_H \in [11000,15000]$, H étant la hauteur de la chambre).

2.3. Caractérisation des champs de vitesse moyenne et de la turbulence

Les profils de vitesse moyenne et des propriétés de la turbulence dans l'enceinte (énergie cinétique turbulente et taux de dissipation correspondant) sont caractérisés de manière non intrusive par anémométrie laser doppler (LDA, Dantec Flow Explorer) à l'aide de deux paires de faisceau laser de longueur d'onde 660 et 785nm. Les rayons convergent pour former un volume de mesure d'environ 9mm^3. Des gouttelettes d'huile d'un diamètre aérodynamique de 1µm sont utilisées comme traceur et la face avant de l'enceinte est alors remplacée temporairement par une vitre. Une attention particulière est prêtée à la résolution spatiale de la caractérisation de l'écoulement au niveau des entrées, étant donné l'influence prédominante du transport sur le développement du champ de concentration de l'aérosol dans l'enceinte (nombre de Péclet >> 1 notamment).

2.4. Mesure de l'âge de l'air

La mesure des distributions de l'âge moyen de l'air, associée à la caractérisation du champ de vitesse, permet de renseigner avec une grande précision les conditions aérauliques dans l'enceinte, lesquelles conditionnent largement l'évolution de l'aérosol. Cette mesure est réalisée de manière intrusive par traçage

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12552

gazeux à l'aide de capteurs à photoionisation Alphasense PID-AH et d'isobutène gazeux. La méthode purge-échelon-purge est utilisée (Sandberg & Sjöberg, 1983).

2.5. Mesure des concentrations et distributions granulométriques

Afin d'être caractérisés, les aérosols sont prélevés à l'aide de tubes conducteurs (diamètre interne 5mm, longueur 2.5m). Un prélèvement co-courant est placé au centre de chacun des conduits d'entrée et de sortie, à 42 cm en amont de la jonction avec l'enceinte pour les entrées et à 15.5 cm en aval de la jonction avec l'enceinte pour la sortie. Un tube de prélèvement rigide pénétrant par des orifices étanches dans la face supérieure de l'enceinte permet de réaliser des cartographies de l'état de l'aérosol dans l'enceinte suivant un maillage cartésien. Dans l'enceinte, le débit de prélèvement utilisé est de 0.3 $NL.min^{-1}$, c'est à dire aussi bas que compatible avec l'instrumentation, afin de limiter l'inévitable intrusivité de la mesure. Les mesures de distribution granulométriques sont réalisées à l'aide d'un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) composé d'un compteur à noyau de condensation (Grimm 5.403 CPC) et d'un DMA (Differential Mobility Analyser, M-DMA, Grimm, type Vienne). Les particules sont ainsi caractérisées en termes de diamètre de mobilité électrique dans la gamme 5-350 nm, avec une résolution temporelle de 7 min. Durant les expérimentations, la stabilité temporelle de la concentration des aérosols en entrée d'enceinte est vérifiée continuellement avec une résolution de 1 s à l'aide d'un compteur à noyau de condensation portable CPC TSI 3007, après dilution. Dans le cas où 2 entrées sont utilisées, un CPC TSI PTRACK permet de suivre la seconde entrée. A noter qu'étant donné la faible inertie des aérosols étudiés, un prélèvement isocinétique n'est pas nécessaire. Dans l'enceinte, une canne de prélèvement rectiligne a été préférée à une canne coudée, l'écoulement dans l'enceinte ne présentant pas de direction privilégiée. Il a été constaté par modélisation qu'une canne rectiligne minimisait les biais de prélèvements, en limitant l'impact sur l'écoulement, en limitant l'incertitude de positionnement et en évitant de privilégier indûment une direction de prélèvement.

2.6. Mesure de la composition chimique

Un des objectifs du banc d'essai Nanocoag est d'étudier l'évolution par tranche granulométrique de la composition chimique de l'aérosol, lorsque deux aérosols de composition et distribution granulométrique différente sont introduits dans l'enceinte. Le cas échéant, le prélèvement est ainsi dirigé vers un impacteur en cascade DLPI+ ((Dekati Ltd., Low Pressure Impactor), chargé de membranes de prélèvement en ester de cellulose (diamètre 25 mm). L'analyse de la composition chimique de l'aérosol prélevé sur chaque étage est ensuite réalisée ex-situ par spectrométrie par émission optique ou par spectrométrie de masse suivant la quantité d'aérosol prélevée. Le débit total de prélèvement du DLPI+ étant de 8.8 $NL.min^{-1}$, une dilution du prélèvement avec de l'air sec est réalisée en amont du DLPI+ pour conserver un débit de prélèvement de 0.3 $NL.min^{-1}$ dans l'enceinte.

3. RESULTATS

3.1. Auto agrégation d'un aérosol

Dans le cas de l'étude de l'autoagrégation d'un aérosol, l'influence de la taille et de la morphologie sur l'évolution de la distribution granulométrique est illustrée par les Figures 3 et 4 ainsi que par la Table 1. Pour un écoulement d'air porteur identique, des nanoparticules d'une dizaine de nanomètres et formant des agrégats peu compacts (oxyde de cuivre) subissent une décroissance de leur concentration en nombre par agrégation supérieure de 55% à celle de particules plus compactes de NaCl d'un diamètre de quelques dizaines de nanomètres. Dans le même temps le taux d'accroissement de leur diamètre géométrique moyen est supérieur de 40% et l'élargissement de leur distribution granulométrique est aussi notablement supérieur.

3.2. Agrégation croisée d'un mélange d'aérosol

Les figures 5 et 6 illustrent le phénomène d'agrégation croisée observé lorsque l'on met en présence deux aérosols de distribution en taille sensiblement différentes, ici un aérosol d'oxyde de cuivre (GMD = 15nm, GSD = 1.7, concentration numérique $2.2 \cdot 10^{7}$ cm^{-3}) avec un aérosol de sulfate de zinc (GMD=74nm, GSD=1.8, concentration numérique $1.2 \cdot 10^{7}$ cm^{-3}). Le mode ultrafin constitué de particules d'oxyde de cuivre est fortement atténué après mélange et agrégation dans l'enceinte, et l'analyse chimique par tranche granulométrique révèle que le cuivre élémentaire, initialement cantonné aux plus petites particules, a contaminé l'ensemble du spectre et notamment les particules de plus grande taille. Ainsi initialement 70% de la masse de cuivre est concentrée dans les particules de diamètre aérodynamique inférieur à 30nm, tandis qu'après agrégation 70% de la masse de cuivre est transportée par les particules de plus de 150nm.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12552

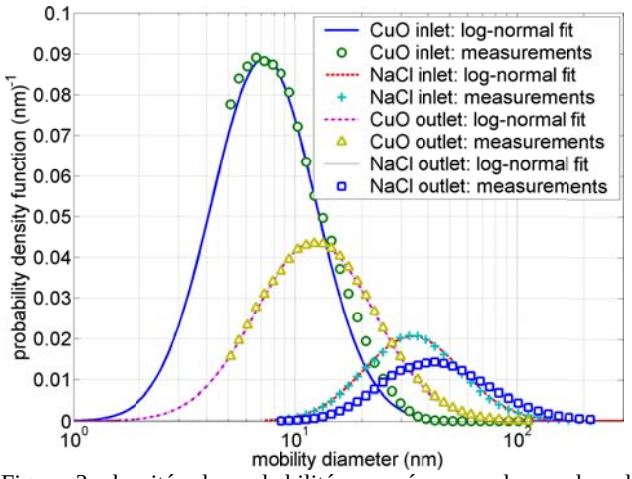

Figure 3: densités de probabilité mesurées pour le nombre de particules en fonction de leur diamètre, mesurées à l'entrée et à la sortie de l'enceinte pour des aérosols de NaCl et d'oxyde de cuivre évoluant par autoagrégation.

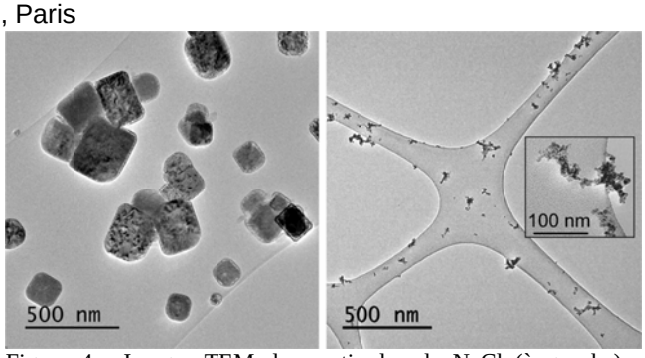

Figure 4 : Images TEM des particules de NaCl (à gauche) et d'oxyde de cuivre (à droite) prélevées sur des grilles holey.

Table 1: Paramètres de la distribution granulométrique des aérosols d'essai en entrée et sortie d'enceinte

Composition	Entrée			Sortie		
	Total number concentration (#.cm^{-3})	GMD (nm)	GSD (nm)	Total number concentration (#.cm^{-3})	GMD (nm)	GSD (nm)
NaCl	6.3 10^6	43.7	1.65	3.04 10^6	58.3	1.75
CuO	7.13 10^6	9.65	1.71	2.21 10^6	17.9	1.85

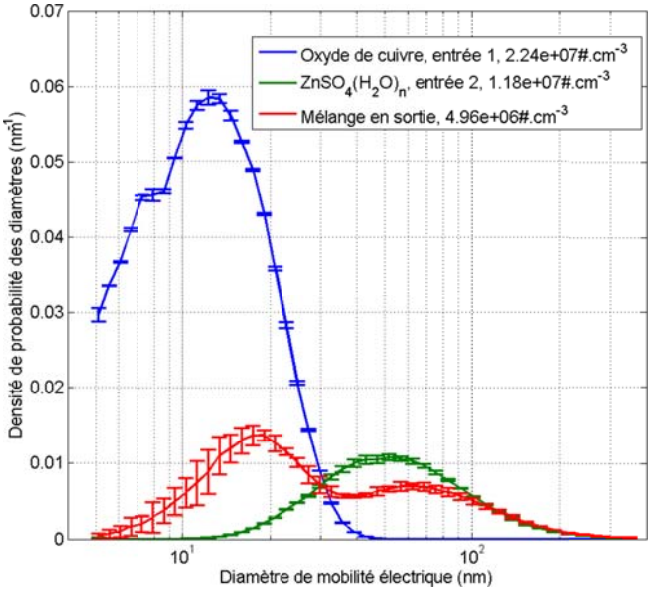

Figure 5 : distributions granulométriques des aérosols d'essai utilisés pour une étude d'agrégation croisée, et distribution obtenue en sortie d'enceinte après mélange et agrégation.

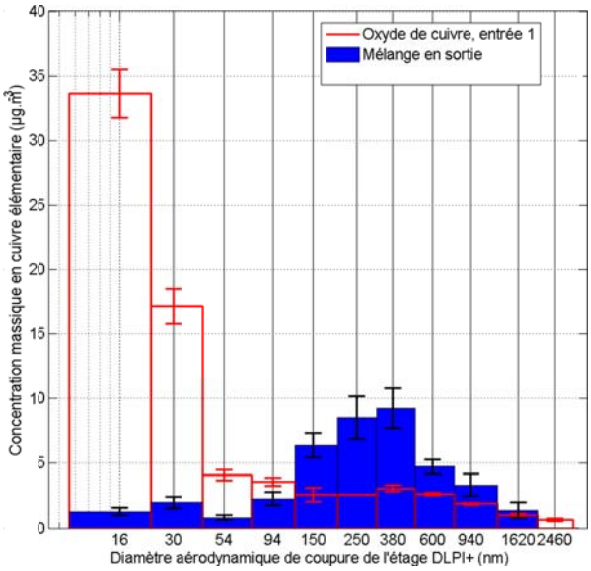

Figure 6 : concentration massique en cuivre par tranche granulométrique en entrée et en sortie d'enceinte pour une étude d'agrégation croisée

4. CONCLUSION

Des cartographies de l'état d'un aérosol de nanoparticules évoluant par auto-agrégation ou par agrégation avec un autre aérosol peuvent ainsi être réalisées avec le dispositif expérimental présenté. La caractérisation en termes de distribution granulométrique et de composition chimique résolue en taille permet par exemple de mettre en évidence et de quantifier le phénomène de contamination du spectre granulométrique, et d'obtenir des données de validation pour des modèles d'exposition, notamment basés sur la mécanique des fluides numérique.

Guichard, R., Tanière, A., Belut, E., & Rimbert, N. (2014). Simulation of nanoparticle coagulation under Brownian motion and turbulence in a differential–algebraic framework: Developments and applications. *International Journal of Multiphase Flow*, *64*, 73–84.

Sandberg, M., & Sjöberg, M. (1983). The use of moments for assessing air quality in ventilated rooms. *Building and Environment*, *18*(4), 181–197.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12552