# Génération et métrologie des particules de masse volumique extrême Application au développement d'une chambre d'inhalation d'aérosols de tungstène

L. Macé <sup>1\*</sup>, C. Ibanez <sup>1</sup>, C. Bodiot <sup>2</sup>, L. Juhel <sup>2</sup> and F. Gensdarmes <sup>2</sup> <sup>1</sup>Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSE-SANTE, SESANE, LRTOX, Fontenay-aux-Roses cedex, 92262, France <sup>2</sup>Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SCA, LPMA, Gif-sur-Yvette cedex, 91192, France

\*leo.mace@irsn.fr

# TITLE

# Generation and metrology of extreme density particles - Application to the development of an inhalation chamber for tungsten aerosols

#### RESUME

Dans le cadre d'une étude sur l'impact de l'inhalation de particules de tungstène sur le système nerveux central chez le rat, on présente le développement d'une méthode de génération à faible concentration massique et une stratégie de mesure pour des aérosols composées de particules de tungstène. La densité extrême du tungstène - 19,3 - entraine une très grande différence entre les diamètres aérodynamique et de mobilité électrique, ainsi que l'apparition de valeurs aberrantes pour certain appareil de mesure.

#### ABSTRACT

Aiming to study the impact of tungsten particles inhalation on the central nervous system in rats, the development of a low mass concentration generation method and a measurement strategy for aerosols composed of tungsten particles are presented. The extreme density of tungsten - 19.3 - causes a high difference between the aerodynamic and electric mobility diameters, as well as appearance of non-reliable data for certain measuring devices.

**MOTS-CLÉS:** Tungstène, inhalation, aérosol, neurotoxicologie / **KEYWORDS:** Tungsten, inhalation, aerosol, neurotoxicology

# 1. CONTEXTE ET OBJECTIF

Les effets de la contamination par inhalation est un sujet d'intérêt dans le domaine nucléaire. Une production importante de particules de tungstène est attendue lors du fonctionnement du réacteur ITER dans la chambre à vide du *Tokamak* du fait des contraintes importantes causées par le plasma et les phénomènes d'érosion sur le *Divertor*. Ces particules pourraient être aérosolisées pendant les opérations de maintenance, lors de l'exploitation de l'installation dans les cellules chaudes, ou en situation accidentelle en cas de perte de vide. Des travaux réalisés au Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols ont montrées que ces particules de tungstène sont de tailles polydispersées allant de 0,1 à 30 µm (Rondeau et al., 2015). Afin d'étudier les effets potentiels d'une exposition aux particules de tungstène - élément métallique pour lequel il existe un manque de connaissances en matière de toxicologie - sur le système nerveux central, il est nécessaire de développer un modèle d'exposition *in vivo* permettant la maitrise de la granulométrie et la concentration d'un aérosol de tungstène avec des concentrations de l'ordre de la VME (Valeur limite Moyenne d'Exposition professionnelle), soit entre 5 et 10 mg.m<sup>-3 1</sup> suivant les fractions conventionnelles considérées.

# 2. PROBLEMATIQUE DE LA METROLOGIE DES PARTICULES TRES DENSES

Une spécificité des particules de tungstène métallique pures et non poreuses réside dans leur très grande masse volumique (19 300 kg.m<sup>-3</sup>). En ce qui concerne la métrologie des aérosols, cette très grande masse volumique implique qu'à concentration massique égale, la concentration en nombre d'un aérosol de tungstène sera de plus d'un ordre de grandeur inférieur à celle un aérosol plus classique avec des particules de masses volumique voisines de 1000 kg.m<sup>-3</sup>. Pour fixer les ordres de grandeur, une concentration de 1000 p.cm<sup>-3</sup> de particules de tungstène sphériques de 1 µm correspond à une concentration massique de 10 mg.m<sup>-3</sup>.Par ailleurs, il existe une très grande différence entre le diamètre diffusionnel ou de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique des particules. Cet écart est d'autant plus élevé que la taille des

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Voir base de l'IFA Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzliche Unfallversicherung

particules est petite. En effet, dans le domaine submicronique, le rapport des coefficients de Cunningham correspondants aux diamètres de mobilité électrique et aérodynamique vient jouer un rôle prépondérant. Pour des particules sphériques et non poreuses, ces deux diamètres sont reliés par l'expression :

$$\rho_0 \cdot D_a^2 \cdot Cu(D_a) = \rho_0 \cdot D_m^2 \cdot Cu(D_m) , \qquad (1)$$

où D<sub>m</sub> est le diamètre de mobilité électrique,  $\rho_p$  la masse volumique du matériau constitutif, Cu le facteur de correction de Cunningham (valeur très proche de 1 pour des diamètres supérieurs à 3 µm),  $\rho_0$  est la masse volumique de référence ( $\rho_0 = 1000 \text{ kg.m}^3$ ) et D<sub>a</sub> est le diamètre aérodynamique.

La figure 1 représente le diamètre aérodynamique calculé en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des particules sphériques en résolvant l'équation 1 ; pour une utilisation pratique, on représente également les ajustements d'une fonction puissance sur la solution de l'équation 1. La figure 1 montre aussi l'évolution du rapport entre ces deux diamètres. Lorsque le diamètre augmente, le rapport Da/Dm tend vers une asymptote de valeur  $\sqrt{19,3} = 4,4$ . En revanche, lorsque le diamètre diminue, le rapport Da/Dm augmente considérablement, il est d'environ 6,6 pour des particules de 100 nm et dépasse une valeur de 15 pour des particules de 5 nm.



Figure 1. Comparaison entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique pour des particules sphériques de tungstène

Ces considérations font émerger plusieurs questions concernant la métrologie des aérosols pour maîtriser les paramètres d'exposition dans une chambre d'inhalation. Comment maîtriser la génération d'un aérosol de tungstène dans le domaine des fractions thoracique et alvéolaire à concentration massique représentative des VME ? Comment mesurer les distributions granulométriques en masse de tels aérosols suivant les diamètres équivalents appropriés (aérodynamique, mobilité électrique) ?

Ces diamètres étant utilisés pour la prédiction du dépôt dans les voies respiratoires il est nécessaire de savoir les mesurer de façon fiable pour réaliser des calculs avec le modèle de la CIPR notamment. Dans ce modèle, le diamètre diffusionnel (assimilé au diamètre de mobilité électrique Dm lorsque les particules sont sphériques et non poreuses) est utilisé pour décrire le dépôt des particules, notamment par diffusion, comprises entre 0,001 µm et environ 1 µm; le diamètre aérodynamique Da est quant à lui utilisé pour calculer le dépôt par sédimentation et effet inertiel pour les diamètres entre 0,1 µm et 100 µm. La figure 2 représente un exemple de calcul de dépôt des particules est une fonction des deux diamètres équivalents Dm et Da. En effet, dans ce domaine de taille bien spécifique, la diffusion brownienne des particules est faible et leur inertie également. En conséquence, comme il n'y pas une réelle prédominance d'un mécanisme il est important de tous les prendre en compte et pour cela il est nécessaire d'utiliser les deux diamètres fequivalents Dm et Da.

Il est généralement très délicat de garantir la représentativité des hypothèses de sphéricité et de compacité des particules obtenues dans un processus de génération d'aérosol. En conséquence, l'utilisation de l'équation 1 pour faire le lien entre les diamètres de mobilité électrique et aérodynamique peut toujours être discutée. C'est pourquoi il est important de procéder à des mesures directes des distributions granulométriques des aérosols suivant ces différents diamètres équivalents lorsque le spectre de taille est dans le domaine transitoire entre 0,1 µm et 1 µm et qu'a *fortiori*, comme pour le tungstène il existe de grandes différences entre Dm et Da.

#### 3. DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET RESULTAS DE GRANULOMETRIE

La chambre d'inhalation est basée sur la conception décrite par André *et al.*, (1989). Le volume de la chambre est égal à 47,5 l (52×59×15,5 cm<sup>3</sup>). A l'intérieur de la chambre, deux ailettes en plexiglas sont collées sur l'une des parois et affleurent la paroi opposée. Elles ont pour fonction de favoriser l'homogénéisation de l'aérosol qui est injecté par la partie supérieure et d'éviter des vitesses d'écoulement trop importantes à proximité des zones où les animaux inhalent l'aérosol, ces vitesses sont liées à l'entraînement de l'air par le jet créé au point d'injection. La figure 3 représente un schéma du dispositif expérimental avec la chambre.





Figure 2. Dépôt des aérosols dans les voies respiratoires en fonction du diamètre de mobilité électrique (Dm) et du diamètre aérodynamique (Da) selon le modèle de la CIPR

Figure 3. Schéma de la chambre d'inhalation

La chambre d'inhalation est équipé de sondes de prélèvement à bords mince dont le diamètre (12 mm) permet de respecter les critères de Davies (1968) pour l'échantillonnage en air calme de particules jusqu'à 5 µm en diamètre aérodynamique avec un débit de prélèvement de 10 L/min. Un orifice de 30 mm de diamètre est utilisé pour les prélèvements à plus grand débit.

Pour générer un aérosol de particules de tungstène avec une concentration massique de l'ordre de la VME soit 10 mg.m<sup>-3</sup> et à un débit d'environ 40 L.min<sup>-1</sup>, le choix s'est porté sur l'utilisation d'un RGB 1000, Palas® (*Rotating Brush Generator*) alimenté avec une poudre de tungstène calibrée. Compte tenu des conditions opératoires de ce générateur, les concentrations d'aérosols produites sont généralement très élevées et cela nécessite l'utilisation d'un système de dilution de l'aérosol en aval. Cet inconvénient, amplifié par la masse volumique très élevée de la poudre de tungstène, nous a conduit à utiliser une solution consistant à diluer la poudre à disperser plutôt qu'à diluer l'aérosol produit. Pour cela, nous effectuons un mélange avec une poudre de bille de tungstène de relativement gros diamètre (TEKNA W-25) dans des proportions en masse bien définies avec la poudre d'intérêt à disperser (ALMT-Corp A20) soit 20% A20 et 80% W-25. Pour obtenir l'aérosol d'intérêt nous utilisons en sortie du RBG 1000 un cyclone afin d'éliminer les grosses particules de la poudre de la poudre de tungstoné en utilisant le logiciel développé par B. Sagot et basé sur le travail publié par son équipe en 2017 (Sagot *et al.*, 2017).

Après différents essais de répétabilité et stabilité de la concentration d'aérosol généré, le fonctionnement du générateur RBG 1000 couplé au cyclone a été fixé avec les conditions suivantes : vitesse du piston 10 mm.h<sup>-1</sup>, pression en entrée 1.5 bar, débit de sortie 42,5 l.min<sup>-1</sup>, capot de dispersion type B, vitesse de rotation de la brosse 1200 rpm. Les mesures sur les aérosols produits dans la chambre ont été réalisées avec différents instruments utilisés deux à deux avec des lignes de prélèvements disposées de façon symétrique sur la chambre. Ainsi des mesures ont été réalisées simultanément avec un impacteur basse pression DLPI-30 lpm Dekati® et un prélèvement basique sur porte filtre  $\emptyset$  37 mm ; un DLPI et un APS (*Aerodynamic Particle Sizer*) 3321 TSI® ; un EEPS (*Engine Exhaust Particle Sizer*) 3090 TSI® et un APS, un ELPI (Electrical Low Pressure Impactor) Dekati® et un APS.

On considère que la granulométrie de référence, donnant la distribution en masse du diamètre aérodynamique est mesurée par l'impacteur DLPI. Signalons que lors des mesures réalisées en parallèle avec le porte filtre, les concentrations massiques données par les deux équipements étaient toujours très proches avec des écarts inférieurs à 5 %.

La comparaison entre le DLPI et l'APS permet de tester la capacité de ce dernier à mesurer des particules très denses pour lesquelles le temps de relaxation dans le régime d'écoulement du TOF (*Time Of Flight*) de l'instrument n'est plus une fonction unique du diamètre aérodynamique et nécessite l'utilisation de la correction de Stokes proposée par Wang et John (1987). Par ailleurs, compte tenu de la très grande différence entre le diamètre aérodynamique des particules et leur diamètre géométrique cette comparaison permet de tester la capacité de l'APS à détecter des particules relativement petites, en limite de sensibilité des systèmes de détection du passage entre les faisceaux laser du TOF bien qu'elles soient tout à fait dans la gamme de mesure en termes de diamètre aérodynamique.

Pour réaliser les mesures avec l'EEPS, compte tenu du diamètre aérodynamique relativement élevé de l'aérosol, nous avons retiré le cyclone disposé à l'entrée de l'instrument qui est dimensionné pour avoir un diamètre aérodynamique de coupure à 1 µm. La granulométrie de base exprimée par l'EEPS est une granulométrie en nombre en fonction du diamètre de mobilité électrique. Afin d'effectuer une comparaison avec les mesures réalisées par l'impacteur DLPI, nous avons adopté une démarche consistant à exprimer la distribution en nombre mesurée par l'EEPS en fonction du diamètre aérodynamique en utilisant les fonctions représentées sur la figure 1 et en accordant une attention particulière à la normalisation de la distribution par rapport au dlog Da car nous rappelons que le rapport Dm/Da n'est pas constant. Sur la distribution ainsi obtenue, nous effectuons l'ajustement d'une loi lognormale pour obtenir le diamètre aérodynamique médian en nombre et l'écart-type géométrique et nous utilisons les propriétés de la fonction lognormale (Hatch et Choate, 1929) pour obtenir la distribution correspondante en masse et son diamètre aérodynamique médian.

Les granulométries obtenues par les différents instruments et analysées comme précédemment décrit sont représentées sur la figure 4. Le diamètre aérodynamique médian en masse déterminé par le DLPI est égal à 1,77 µm, celui déterminé par l'APS avec la correction de Stokes est égal à 1.89 µm. Le diamètre médian en mobilité électrique déterminé par l'EEPS est égal à 0,17 µm.



Figure 4. Distribution granulométrique de l'aérosol de tungstène

# 4. CONCLUSION

Les résultats obtenus montrent un très bon accord entre les mesures réalisées avec le DLPI, l'APS et l'EEPS. La méthodologie développée pour l'analyse des résultats de l'EEPS permet de conforter les mesures de diamètre de mobilité électrique effectuées avec cet instrument dans une gamme de tailles aérodynamiques jamais explorée et pour laquelle l'instrument n'est initialement pas conçue. Les résultats permettent également d'apprécier l'effet de densité des particules sur la réponse de l'APS et la validation de la correction de Stokes pour des densités allant jusqu'à 19,3. Signalons toutefois que ces résultats n'ont pas pu être reproduits en utilisant un autre APS TSI-3321 ce qui pose la question du réglage de la sensibilité des systèmes de détection du passage des particules entre les faisceaux laser du TOF pour les diamètres (de mobilité électrique) inférieurs à environ 0,5 µm.

Andre S., Charuau J., Rateau G., Vavasseur C., Mitivier H. (1989) J. Aerosol Science, 20, 647-656.

Davies C.N. (1968) British Journal of Applied Physics, 25, 921-932.

Hatch T., Choate S.P. (1929). J. Franklin Inst. 207, 369-387.

Sagot B., Forthomme A., Ait Ali Yahia L., De La Bourdonnaye G. (2017) J. Aerosol Science 110, 53-69.

Wang H-C., John W. (1987) Aerosol Science and Technology 6, 191-198.