# CARACTERISATION STRUCTURALE DE MEDIAS DE COLLECTE DE NANOPARTICULES PAR DIFFUSION ET MESURE EXPERIMENTALE DE LA PENETRATION

Angela Hoyos<sup>1, 2</sup>, Aurélie Joubert<sup>2</sup> et Sébastien Bau\*1

<sup>1</sup>Laboratoire de Métrologie des Aérosols, INRS, 54519 Vandoeuvre les Nancy, France <sup>2</sup>IMT Atlantique, GEPEA, CNRS UMR 6144, CS 20722, 44307 NANTES, France \*Courriel de l'orateur : sebastien.bau@inrs.fr

# TITLE

# Structural properties determination and experimental penetration measurement of diffusion grids

## RESUME

La distribution granulométrique des aérosols de nanoparticules compte parmi les paramètres d'importance dans la caractérisation des expositions professionnelles, et sa mesure requiert des techniques très coûteuses et délicates à mettre en œuvre sur le terrain. Dans le cadre du développement d'une solution alternative à ces méthodes reposant sur l'utilisation d'un couple sélecteur / détecteur, deux médias permettant la sélection diffusionnelle des particules submicroniques ont été caractérisés en laboratoire. Les propriétés structurales de ces médias, ainsi que la mesure expérimentale de leur efficacité de collecte, ont été utilisées pour alimenter des modèles théoriques et semi-empiriques de pénétration. Le modèle mathématique développé s'ajuste bien aux résultats expérimentaux de pénétration pour différents médias et permet de caractériser l'efficacité de collecte de toutes les particules indépendamment de leur morphologie.

## ABSTRACT

The number size distribution of airborne submicrometer particles is one of the most important parameters for the characterization of occupational exposures, and its measurement involves expensive techniques that are not often suitable for workplace measurements. As part of the development of an alternative solution to these methods based on the combination of particle size selectors and a portable condensation particle counter, two media were characterized in the laboratory. The structural properties of these diffusion grids, as well as their experimental collection efficiency, were used to develop theoretical and semi-empirical models of penetration. The resulting mathematical model fits well to the experimental values for different velocities and allows characterizing the collection efficiency of particles regardless of their morphology.

MOTS-CLES : diffusion, pénétration, nanoparticules / KEYWORDS: diffusion, penetration, nanoparticles

# 1. CONTEXTE ET OBJECTIFS

De nombreux scénarios sont à l'origine de situations d'expositions professionnelles à des aérosols de toute nature, taille, forme et composition chimique. Quelle que soit l'origine de ces aérosols, la présence d'une fraction submicronique dans leur composition peut être considérée comme ubiquitaire. En complément à la concentration massique et à la nature chimique, la concentration en nombre, ainsi que la taille, constituent des indicateurs intéressants à étudier pour la caractérisation des expositions professionnelles aux aérosols submicroniques. La connaissance de la distribution granulométrique des aérosols submicroniques est également un paramètre d'intérêt dans la caractérisation des expositions professionnelles car la taille des particules inhalées est déterminante quant au lieu de dépôt dans l'appareil respiratoire.

Pour mesurer la distribution granulométrique d'un aérosol, il est d'usage d'employer des appareils couplant une étape de sélection des particules et une étape de détection. Cependant, il a été constaté qu'il n'existe pas, à l'heure actuelle, d'appareil de mesure en temps réel de la distribution granulométrique en nombre des aérosols submicroniques qui soit adapté au terrain, portable, robuste, accessible à des non spécialistes, et (relativement) peu coûteux (Jørgensen, 2019) (Bau et al., 2015).

Au vu des éléments précédents, il apparaît important de proposer une méthodologie opérationnelle permettant de déterminer en quasi-temps réel la distribution granulométrique en nombre d'aérosols submicroniques. Ce travail s'inscrit dans le cadre du développement de cette solution, qui sera basée sur les propriétés diffusionnelles des particules et reposera sur l'utilisation d'un couple sélecteur / détecteur.

Dans un premier temps, une caractérisation des propriétés structurales de différents sélecteurs diffusionnels a été menée. Ensuite, la détermination expérimentale de l'efficacité de collecte de ces médias sur différents aérosols d'essais générés au laboratoire, et dans différentes conditions aérauliques, a été conduite afin de développer un modèle semi-empirique de pénétration. Cet article présente les résultats de la caractérisation et la mesure expérimentale de l'efficacité de collecte de particules pour deux sélecteurs diffusionnels : une grille en inox 304 et une grille en nylon. En parallèle, pour déterminer le système de portage le plus adapté pour la mesure expérimentale de la pénétration, une étude paramétrique en faisant varier le matériau du porte-grille et la présence de neutraliseur, a été menée.

# 2. MATERIELS ET METHODES

### 2.1. Caractérisation des propriétés structurales des médias

Les premiers médias testés au cours de cette étude sont des grilles de diffusion circulaires, caractérisées par la compacité  $\alpha$ , décrite par :

$$\alpha = \frac{volume\ fibre}{volume\ total} = \frac{4m_g}{\pi d_g^2 t_g \rho_g}$$

Avec  $m_g$ ,  $d_g$  et  $t_g$  la masse, le diamètre et l'épaisseur d'une grille, et  $\rho_g$  la masse volumique du matériau constituant les fibres des grilles. L'ouverture du maillage w, ainsi que le diamètre de fibre  $d_f$ , représentent également des paramètres essentiels pour la caractérisation des médias. Dans cette étape, trois grilles ont été évaluées, deux en inox 304 et une en nylon. Pour déterminer la masse  $m_g$ , huit grilles de 25 mm de diamètre  $d_g$  ont été pesées à l'aide d'une balance de précision (METTLER XP6U, résolution 1 µg). Des clichés de microscopie électronique à balayage ont été réalisés et utilisés pour mesurer leurs propriétés ( $d_f$ , w).

## 2.2. Aspects théoriques

Il est d'usage de caractériser l'efficacité de collecte globale d'un média en fonction de la pénétration. Cheng et Yeh (1980) ont développé un modèle théorique pour décrire la pénétration P d'une particule au travers d'un ensemble de n grilles de diffusion identiques :

$$P = exp\left(\frac{-4n\alpha(E_D + E_R + E_I + E_{DR})t_g}{\pi(1 - \alpha)d_f}\right)$$

Dans cette équation,  $E_D$ ,  $E_R$ ,  $E_I$  et  $E_{DR}$  représentent respectivement les efficacités de collecte des particules par des mécanismes de diffusion, d'interception, d'impaction, et une combinaison diffusion/interception, et dépendent de nombres adimensionnels tels que le nombre de Péclet (*Pe*), le facteur de Kuwabara (*Ku*), ou bien le nombre de Stokes (*Stk*). Dans le Tableau 1 les équations exprimant ces efficacités unitaires de collecte sont présentées. *B* et v représentent des constantes dépendantes du système et de la configuration utilisés.

| Mécanisme de collecte     | Expression                               | Auteurs                   |
|---------------------------|--|---------------------------|
| Diffusion                 | $E_D = BPe^{-\frac{2}{3}}$               | Fuchs et Stechkina (1963) |
| Interception              | $E_R = \frac{g(R)}{2Ku}$                 | Brown (1993)              |
| Impaction                 | $E_I = \frac{Stk^2}{(1 + \nu Stk)^2}$    | Langmuir (1948)           |
| Diffusion / Interception. | $E_{DR} = \frac{StkJ(\alpha, R)}{4Ku^2}$ | Yeh et Liu (1974)         |

# ableau 1. Expressions des efficacités unitaires de collecte selon le mécanisme

### 2.3. Détermination des courbes de pénétration

Par l'intermédiaire du banc d'essais CAIMAN (Jacoby et al., 2011), d'un atomiseur TSI 3076 et d'un générateur PALAS AGK-2000, des aérosols d'agglomérats de titane et de laiton, ainsi que des aérosols de sphères de chlorure de césium et de DEHS ont été générés. Pour un diamètre de particule donné, sélectionné grâce à un analyseur différentiel de mobilité électrique, la pénétration expérimentale des particules des aérosols au travers des médias a été calculée par (Figure 1) :

$$P(d_p) = \frac{C_2(d_p)}{C_1(d_p)}$$

Les concentrations ont été déterminées à l'aide d'un compteur de noyaux de condensation. La courbe expérimentale de la pénétration a été réalisée à 3 vitesses d'écoulement (7,0 cm/s, 2,8 cm/s et 1,4 cm/s) et pour trois ensembles de grilles : une grille en inox 304 ( $d_f = 36\mu m$ ,  $w = 50\mu m$ ), une grille en nylon ( $d_f = 20\mu m$ ,  $w = 20\mu m$ ), et une superposition de 10 grilles identiques en inox 304 ( $d_f = 36\mu m$ ,  $w = 50\mu m$ ). Afin d'ajuster les courbes théoriques aux mesures expérimentales, nous avons optimisé les paramètres *B* et *v* en minimisant la différence entre les valeurs expérimentales et théoriques pour toutes les configurations investiguées.



Figure 1. Schéma du banc d'essai expérimental

Afin de réduire les pertes par dépôt, il a fallu utiliser un système limitant les effets électrostatiques. Pour déterminer l'assemblage le plus adapté, une étude paramétrique a été menée ; le Tableau 2 présente les configurations évaluées. La pénétration  $P'(d_p)$  a été mesurée afin de vérifier le dépôt de particules :

$$P'(d_p) = \frac{C_1(d_p)}{C_0(d_p)}$$

Tableau 2. Configurations évaluées dans l'étude paramétrique

| # Configuration | Système                                    | Particules   | Type de porte-grille (cassette) |
|-----------------|--|--------------|---------------------------------|
| 1               | Porte-grille polystyrène                   | Chargées     | Isolant                         |
| 2               | Soft X-Ray 3088 + Porte-grille polystyrène | Neutralisées | Isolant                         |
| 3               | Porte-grille polypropylène                 | Chargées     | Conducteur                      |

### 3. RESULTATS ET DISCUSSION

# 3.1. Choix du système de portage

La Figure 2 présente les résultats de l'étude paramétrique à la vitesse de 7,0 cm/s. Deux tendances se distinguent dans ce graphique : des pénétrations assez constantes et élevées lors de l'utilisation des configurations 2 et 3, et des pénétrations croissantes avec la taille des particules pour la configuration 1. Ces résultats mettent en évidence un dépôt de particules pour la configuration 1 lié à la présence de forces électrostatiques. En revanche, la pénétration au travers des configurations 2 et 3 est toujours supérieure à  $\approx 0.9$ , de ce fait, les pertes dues aux effets électrostatiques dans ces configurations peuvent être négligées. Pour des raisons pratiques, nous avons retenu la configuration 2 pour la mesure de pénétration par la suite.



Figure 2. Pénétration au travers des différents systèmes de portage / configurations ; U=7,0 cm/s

### 3.2. Détermination des courbes de pénétration

Les figures 3 et 4 présentent les résultats expérimentaux et théoriques obtenus pour la grille en nylon et l'ensemble de 10 grilles en inox aux 3 vitesses étudiées. Le modèle mathématique obtenu indique une valeur de B = 3,05 et de v = 1,00. Dans la gamme de diamètres évalués, le facteur v n'a pas d'effet sur les pénétrations. En effet, le changement de sa valeur ne modifie pas significativement les courbes de pénétration, ce qui suggère que les effets inertiels sont négligeables. En revanche, la valeur de *B* a un effet significatif sur

la modélisation, et celle-ci coïncide avec les valeurs de la littérature. Feldpausch et al. (2006) ont rapporté des valeurs de *B* dans la plage de 2,43 à 2,95. Cheng et Yeh (1980) recommandent *B*  $\epsilon$  [1,5; 2], et Bau et Nuvoli (2019) proposent *B* = 2,32 ± 0,06 pour les agglomérats. Les résultats obtenus sont très prometteurs, le modèle développé décrit correctement l'efficacité de collecte de deux médias avec des caractéristiques différentes. Aucune différence significative n'a été repérée entre le comportement des aérosols de sphères (chlorure de césium, DEHS) et d'agglomérats (laiton, titane), de ce fait le modèle est ainsi adapté pour la mesure de la pénétration des particules indépendamment de leur morphologie.



Figure 3. Pénétration expérimentale et théorique pour une grille de diffusion en nylon



Figure 4. Pénétration expérimentale et théorique pour une superposition de 10 grilles de diffusion en inox 304

## 4. CONCLUSION

Ce travail a permis de caractériser l'efficacité de collecte de deux sélecteurs diffusionnels. En raison des forces électrostatiques, il a été mis en évidence l'importance de l'évaluation du système de portage des médias pour la détermination expérimentale de pénétration des particules. Le modèle mathématique d'efficacité de collecte développé s'ajuste bien aux données expérimentales. Le modèle semble robuste face à une diversité de particules et médias. A terme, les résultats obtenus à partir de la mesure de *n* concentrations en nombre en aval de différents sélecteurs, associés à des méthodes d'inversion de données, contribueront au développement d'une solution technique innovante pour estimer la distribution granulométrique d'un aérosol submicronique pouvant être facilement déployée en atmosphères professionnelles.

- Bau, S., & Nuvoli, J. (2019). Combining the Particle Size Selector and a condensation particle counter to determine the number size distribution of airborne nanoparticles. *Journal of Aerosol Science, 128*, 22-33.
- Bau, S., Witschger, O., Galland, B., & Martin, P. (2015). Métrologie en temps réel de substances chimiques au poste de travail: intérêts et limites. *Hygiène et Sécurité du Travail, 239*, 6-10.
- Brown, R. C. (1993). *Air filtration : an integrated approach to the theory and applications of fibrous filters*. Oxford; New York: Pergamon Press.
- Cheng, Y. S., & Yeh, H. C. (1980). Theory of a screen-type diffusion battery. Journal of Aerosol Science, 11(3), 313-320.
- Feldpausch, P., Fiebig, M., Fritzsche, L., & Petzold, A. (2006). Measurement of ultrafine aerosol size distributions by a combination of diffusion screen separators and condensation particle counters. *Journal of Aerosol Science*, 37(5), 577-597.
- Fuchs, N. A., & Stechkina, I. B. (1963). A Note on the Theory of Fibrous Aerosol Filters. *The Annals of Occupational Hygiene*, 6(1), 27-30.
- Jacoby, J., Bau, S., & Witschger, O. (2011). CAIMAN: A versatile facility to produce aerosols of nanoparticles. *Journal of Physics: Conference Series, 304*, 012014.
- Jørgensen, R. B. (2019). Comparison of four nanoparticle monitoring instruments relevant for occupational hygiene applications. *Journal of Occupational Medicine and Toxicology*, *14*(1), 28.
- Langmuir, I. (1948). The production of rain by a chain reaction in cumulus clouds at temperatures above freezing. *Journal* of Atmospheric Sciences, 5(5), 175-192.
- Yeh, H.-C., & Liu, B. Y. H. (1974). Aerosol filtration by fibrous filters—II. experimental. *Journal of Aerosol Science*, 5(2), 205-217.