

PERTES DE NANOParticules DANS UN SYSTÈME D'ÉCHANTILLONNAGE EN ENVIRONNEMENTS SATURÉS EN HUMIDITÉ

A. Kort^{*1}, C. Bender Rodrigues¹, C. Bodiot¹, F. Gensdarmes¹

¹Autorité de Sûreté Nucléaire et de Radioprotection (ASN), PSN-RES/SCA/LPMA, F-91400, Saclay, France

^{*}amel.kort@asn.fr

TITLE

Characterization of Nanoparticle Losses in a Sampling System Operated in Saturated-Humidity Environments

RESUME

Dans le cadre d'études visant à caractériser les descendants du radon dans les grottes touristiques, il est essentiel d'évaluer les pertes de nanoparticules au sein du système de séchage utilisé. Cette étude examine ces pertes en fonction du diamètre des particules, du débit d'échantillonnage et de l'humidité relative dans un sécheur à membrane NAFION. Les résultats montrent que les pertes augmentent avec l'humidité relative et diminuent avec le diamètre des particules.

ABSTRACT

In studies aiming to characterize radon progeny in touristic caves, it is essential to evaluate nanoparticles losses within the drying system used. This study examines these losses as a function of particle diameter, sampling flow rate, and relative humidity in a NAFION membrane dryer. The results show that losses increase with relative humidity and decrease with particle diameter.

MOTS-CLÉS: pertes, sécheur à membrane NAFION, Humidité Relative/ **KEYWORDS:** losses, NAFION membrane dryer, Relative Humidity

1. INTRODUCTION

Afin d'évaluer l'exposition professionnelle des travailleurs (guides, spéléologues) dans les grottes touristiques au radon, la distribution granulométrique de ses descendants à courte vie doit être évaluée plus finement. Les grottes présentent des atmosphères avec une humidité relative (HR) généralement comprise entre 95 % et 100 %. Dans ces conditions, l'utilisation d'un système d'échantillonnage des aérosols adapté et qualifié est indispensable. Afin de réduire l'humidité à des niveaux compatibles avec le bon fonctionnement des instruments de mesure, généralement en dessous de 40 % (NF EN 16976 (2024)), un sécheur à membrane NAFION a été utilisé.

Toutefois, l'utilisation d'un sécheur dans une ligne de prélèvement d'aérosol induit des pertes de particules dépendant de leur taille, du débit de prélèvement mais également des conditions environnementales, notamment de l'humidité relative.

L'effet du débit de prélèvement et du diamètre des particules sur les pertes dans le sécheur NAFION MD-700 a été mis en évidence dans une étude menée par TROPOS utilisant des aérosols d'argent (Bohensky *et al.*, 2014). Les résultats ont montré une diminution des pertes avec l'augmentation du débit ainsi qu'avec le diamètre des particules.

Zoller *et al.*, (2020) ont observé les mêmes tendances pour des particules de cuivre. De plus, ils montrent que les pertes en nanoparticules électriquement chargées sont supérieures à celles non chargées.

En ce qui concerne le dépôt des nanoparticules dans les lignes de prélèvement, on s'attend effectivement à une contribution de la diffusion brownienne dont l'importance va dépendre de la taille des particules, du régime d'écoulement et du temps de résidence des particules dans la ligne de prélèvement. En plus, pour le cas d'un sécheur aérosol où l'humidité relative va varier notamment radialement, on s'attend également à une contribution de la diffusiophorèse liée au gradient de concentration de vapeur d'eau qui est créé par la membrane NAFION.

Cependant, à ce jour, seul le travail de Schmitt *et al.* 2024 présenté à la conférence européenne sur les aérosols (EAC) a montré qu'il existe un effet non négligeable de l'humidité sur l'efficacité d'échantillonnage, mais aucun article ne fournit de relation quantitative entre l'humidité relative de l'aérosol à l'entrée et les pertes de particules dans le sécheur.

Dans cet article, des premiers résultats sur la caractérisation de ces pertes sont présentés et discutés en fonction du diamètre des particules, du débit d'échantillonnage et de l'humidité relative dans un sécheur à membrane NAFION.

2. MATERIEL ET METHODES

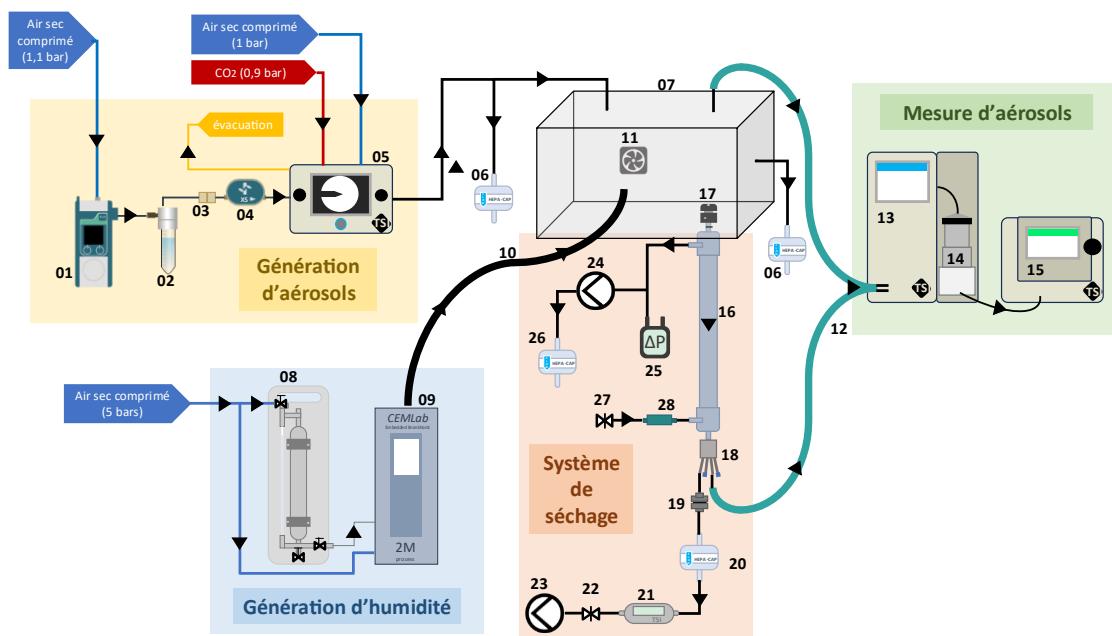
L'étude des pertes des nanoparticules dans un sécheur NAFION est réalisée à l'aide du banc expérimental présenté sur la Figure 1. L'aérosol d'essai utilisé est composé de particules de sucre.

Le dispositif expérimental est composé :

- d'un module de génération des aérosols : constitué d'un générateur à électro-nébulisation (*Electrospray Aerosol Generator*, modèle 3482 de TSI, EAG) et d'un système d'alimentation en liquide Fluigent Flow EZ 1000 mbar ;
- d'un module de génération d'air humide : générateur intégré CEMLab (2M Process), utilisant des composants Bronkhorst ;
- d'un module de prélèvement et de séchage du flux d'aérosols : constitué d'une tête de prélèvement CATHIA (Capteur Alvéolaire Thoracique Inhalable d'Aérosols) et d'un sécheur à membrane NAFION de la série MD-700 (modèle MD-700-24D-1 de Perma Pure, de diamètre interne 17 mm et de longueur 60 cm), utilisé avec une pression du contre flux égale à 230 mbar absolu ;
- d'un module de mesure de la distribution granulométrique des aérosols (*Scanning Mobility Particle Sizer*) SMPS 3938 de TSI.

L'aérosol d'essai produit par l'électrospray est introduit dans un volume d'expérimentation où il est mélangé à un flux d'air humide contrôlé, mis en circulation grâce à un petit ventilateur. L'humidité dans ce volume, à une température donnée, est réglée en ajustant le débit, l'humidité relative et la température de l'air humide fourni par le générateur d'humidité CEMLab.

L'humidité de l'aérosol est mesurée à trois endroits : dans le volume d'essai, à la sortie du sécheur NAFION et dans le SMPS. Il est important de noter que, dans ce montage expérimental, l'humidité de l'air utilisé pour le contre-flux de la membrane NAFION (voir élément 24, Figure 1) n'est pas contrôlée. Cet air correspond simplement à l'air ambiant du laboratoire, dont l'humidité relative a varié au cours des essais entre environ 40 % et 60 %.



(01) Flow EZ 1000 mbar (Fluigent)	(11) Ventilateur d'homogénéisation	(21) Débitmètre Série 4100 (TSI)
(02) P-Cap + Vial 50 ml	(12) Symétrie de mesure AMONT et AVAL	(22) Vanne pointeau de prélèvement
(03) Filtre en ligne PEEK Frit 2µm (IDEX)	(13) Classificateur électrostatique Modèle 3082 (TSI)	(23) Pompe de prélèvement des aérosols
(04) Débitmètre Flow UNIT XS (Fluigent)	(14) DMA-Nano Modèle 3085A (TSI)	(24) Pompe à contre-courant sécheur
(05) EAG Modèle 3482 (TSI)	(15) CPC Modèle 3776 (TSI)	(25) Capteur de pression différentielle (Wohler-DM602)
(06) Exhaust - Filtre HEPA-CAP (Whatman)	(16) Sécheur Nafion MD-700-24S-1 (Permapure)	(26) Filtre Pompe (24) HEPA-CAP (Whatman)
(07) Boîte de conditionnement des aérosols	(17) Tête de prélèvement CATHIA	(27) Vanne pointeau de régulation de ΔP
(08) Capacité d'eau 500 ml	(18) Diviseur de débit	(28) Filtre Nylon en ligne (Parker)
(09) Générateur de HR (Bronkhorst)	(19) Sonde thermo-hygrométrique	
(10) Flexible chauffant 1 m	(20) Filtre Pompe (23) HEPA-CAP (Whatman)	

Figure 1 : Disposition du banc expérimental pour la caractérisation des pertes dans le sécheur à membrane NAFION

La fraction de particules déposées dans la ligne de prélèvement est calculée pour chaque aérosol d'essai avec la relation :

$$\text{Pertes} = 1 - \frac{\text{Concentration totale}_{\text{AVAL}}}{\text{Concentration totale}_{\text{AMONT}}} \quad (1)$$

Les concentrations totales en aval et en amont de la ligne d'échantillonnage sont mesurées par le SMPS en utilisant deux lignes de prélèvement parfaitement symétriques composées de tubes antistatiques (Vanguard, diamètre interne 1/4 pouce) insérés dans un système de maintien fabriqué en impression 3D.

Signalons que compte tenu des possibilités de conduite du banc d'essai, avec les niveaux de concentration d'aérosol atteints dans le volume et les durées des paliers de génération à concentration stable, il n'a pas été possible de trouver un paramétrage du SMPS permettant d'effectuer une analyse de perte par canal de mesure en raison de la statistique de comptage. En conséquence, dans les premiers résultats présentés ici, la perte est déterminée à partir des concentrations totales amont et aval, et mise en relation avec le diamètre médian de l'aérosol d'essai. La figure 2 représente une granulométrie typique obtenue avec l'électrospray ; ici, le diamètre médian en nombre est égal à 6 nm.

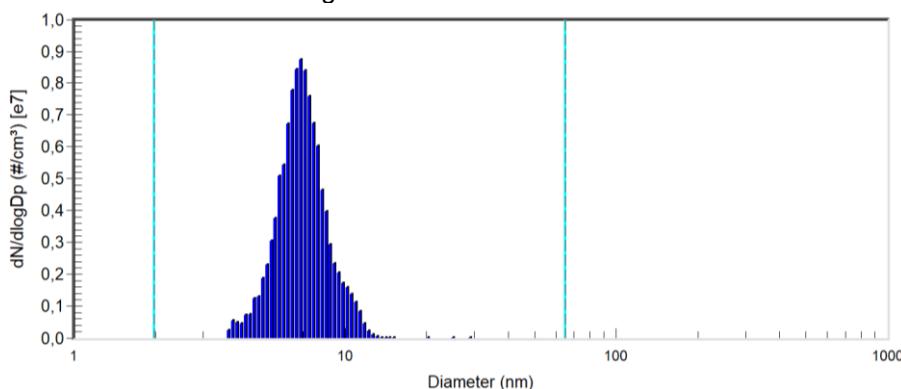


Figure 2 : Granulométrie d'un aérosol de sucre produit par l'électro-spray D50= 6 nm

3. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les fractions de pertes (eq.1) sont représentées sur la Figure 3 pour chaque combinaison des paramètres testés :

- diamètres médians D50 des aérosols d'essais entre 6 et 17 nm ;
- humidités relatives RH de 30 %, 50 %, 70 % et 95 % ;
- débits d'échantillonnage de 3 L/min, 5 L/min et 8 L/min.

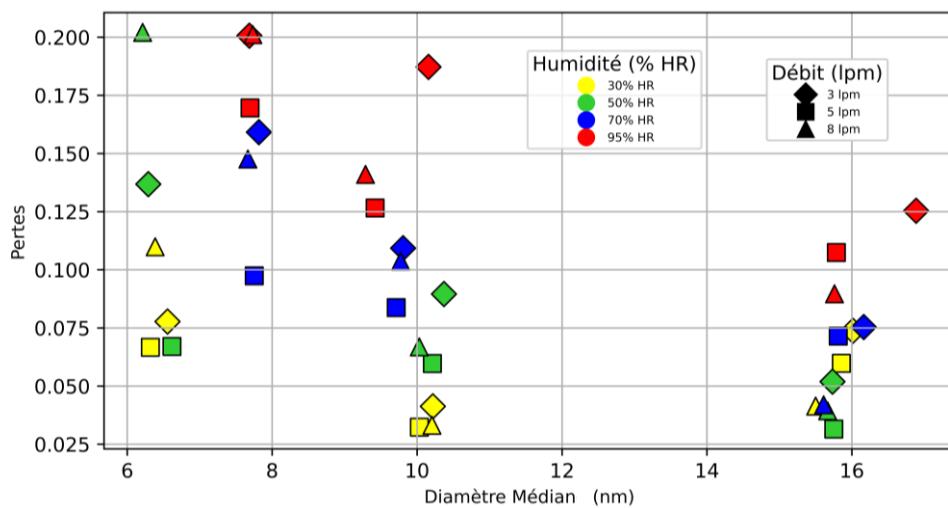


Figure 3 : Pertes exprimées en fraction dans la ligne d'échantillonnage, en fonction du diamètre médian des aérosols avec des humidités allant de 30 à 95 % et des débits de 3 à 8 L/min

Les résultats obtenus montrent globalement une tendance à l'augmentation des pertes avec l'augmentation de l'humidité relative. L'effet du débit d'échantillonnage n'est pas flagrant pour toutes les configurations (D50, RH) avec parfois des résultats contraires à l'attendu, par exemple à 6 nm la fraction déposée la plus élevée est obtenue pour le débit le plus élevé. Une analyse plus approfondie avec les incertitudes de mesure devra permettre de mieux expliquer ces résultats. Toutefois, à ce stade, afin d'identifier plus précisément l'effet de

l'humidité et donc les pertes vraisemblablement liées à la diffusiophorèse, on calcule à partir de ces premiers résultats expérimentaux l'excès de perte par rapport au simple mécanisme de dépôt par diffusion brownienne. Pour cela, on détermine les pertes théoriques par diffusion brownienne P_{diff} dans un tube cylindrique de même géométrie que le sécheur à membrane NAFION avec les conditions de température et de pression de l'aérosol échantillonné. Ces pertes théoriques dues à la diffusion sont calculées pour un écoulement laminaire avec la corrélation de Gormley et Kennedy (1949) et l'excès de perte est calculé par :

$$Perte_{excès} = (1 - \text{Concentration totale}_{AVAL} / \text{Concentration totale}_{AMONT}) - P_{diff}. \quad (2)$$

La Figure 4 montre les résultats obtenus sur l'excès de perte causé par le processus de déshumidification en fonction du diamètre médian pour les différentes humidités et débits testés.

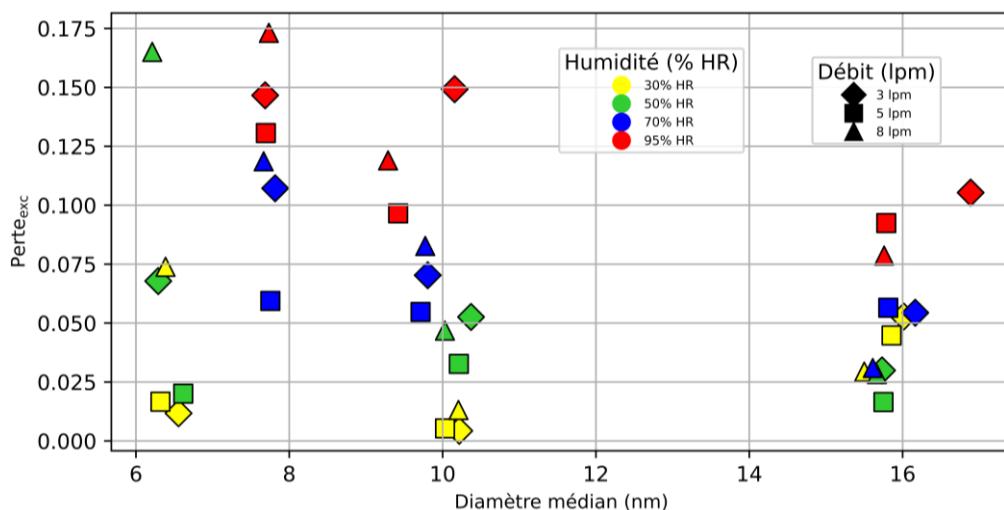


Figure 4 : Excès de pertes par rapport à la diffusion brownienne

La Figure 4 permet d'observer les tendances suivantes concernant les pertes induites par le sécheur :

- un excès de perte attribuable à la diffusiophorèse compris entre 8 % et 18 % pour l'humidité la plus élevée (RH=95%),
- une augmentation significative de l'excès de perte avec l'augmentation de l'humidité relative,
- une diminution de l'excès de perte avec l'augmentation du diamètre des particules pour les humidités relatives de 70 % et 95 %, cet effet n'étant pas visible pour les humidités plus faibles.

4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les pertes les plus élevées, à hauteur de 20 %, dans la ligne d'échantillonnage sont observées pour les particules de plus petite taille ($D50= 6 \text{ nm}$) et les humidités relatives les plus élevées (RH=95 %). La diffusion brownienne apparaît comme le mécanisme principal de dépôt des aérosols dans la gamme de taille étudiée (6 – 17 nm). La contribution des pertes par diffusiophorèse augmente avec l'humidité relative de l'aérosol mais apparaît toutefois limitée dans les configurations étudiées avec une participation d'au maximum 18 % pour une humidité de 95 %.

L'étude sera approfondie en poursuivant les essais avec d'autres paramètres pour les mesures de concentration afin de déterminer précisément les incertitudes. Un modèle de diffusiophorèse sera également testé pour analyser les résultats expérimentaux.

RÉFÉRENCES

- Baron, P. A., & Willeke, K. (2001). *Aerosol measurement: principles, techniques, and applications* (P. A. Baron & K. Willeke (eds.); Second Edi). John Wiley & Sons.
- Bohensky, G., Sunada, C., Smith, P., Wiedensohler, A., & Tuch, T. (2014). *Characterizing the Particle Losses of a Large Diameter NAFION® Dryer* (p. 1).
- Gormley, P.G. and Kennedy, M. (1949) Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube. Proceedings of the Royal Irish Academy, 52A (1949), pp. 163-169.
- Schmitt S., Zorn S., Zanders, Kykal C. Bishof O., Tritscher T. (2024) In-depth characterization of an ambient sampling inlet system at the steady state SAPHIR-STAR chamber. Abstract of European Aerosol Conference, Tampere 2024.
- Zoller, J., Gulden, J., Meyer, J., & Dittler, A. (2020). Loss of Nanoparticles in a Particulate Matter Sampling System Applied for Environmental Ultrafine Particle Measurements. *Aerosol Science and Engineering*, 4(2), 50–63.