



HAL
open science

Étude des Mécanismes de Transfert des Nanoparticules au travers d'une Barrière de Confinement Dynamique

Vincent Césard

► **To cite this version:**

Vincent Césard. Étude des Mécanismes de Transfert des Nanoparticules au travers d'une Barrière de Confinement Dynamique. Autre. Université de Lorraine, 2012. Français. NNT : 2012LORR0190 . tel-01749607

HAL Id: tel-01749607

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749607>

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



Institut de Radioprotection et de Sûreté
Nucléaire
BP 68
91192 Gif-sur-Yvette Cedex

Institut National de Recherche et Sécurité
1 rue du Morvan
54519 Vandœuvre-lès-Nancy

Ecole Doctorale EMMA
Energie Mécanique et Matériaux

Laboratoire d'énergétique et de mécanique
théorique et appliquée
2 Avenue de la Forêt de Haye
BP160
54504 Vandœuvre-lès-Nancy

Université de Lorraine
34 cours Léopold
54 000 Nancy

THESE

présentée en vue de l'obtention du grade de
Docteur de l'Université de Lorraine
spécialité

Mécanique et Energétique

**Etude des Mécanismes de Transfert des Nanoparticules au
travers d'une Barrière de Confinement Dynamique**

par

Vincent CESARD

Directeur de thèse : **Anne TANIÈRE** MDC et HDR UL
Co-Directeur de thèse : **Nicolas RIMBERT** MDC UL

Soutenue publiquement le 16 novembre 2012, devant le jury composé de :

Président : **Markus ABEL** Professeur Université de Lorraine

Rapporteurs : **Gerhard KASPER** Professeur KIT, Allemagne
Evelyne GEHIN Professeur CERTES, Paris Est Créteil

Examineurs :
Emmanuel BELUT Chargé d'étude INRS, Vandœuvre-lès-Nancy
Anne TANIÈRE MDC et HDR Université de Lorraine
Nicolas RIMBERT MDC Université de Lorraine

Invités :
Jean-Raymond FONTAINE Chargé d'étude INRS, Vandœuvre-lès-Nancy
Corinne PREVOST Chargé d'étude IRSN, Saclay

**Institut de Radioprotection et de Sûreté
Nucléaire**
BP 68
91192 Gif-sur-Yvette Cedex

Institut National de Recherche et Sécurité
1 rue du Morvan
54519 Vandœuvre-lès-Nancy

Ecole Doctorale EMMA
Energie Mécanique et Matériaux

**Laboratoire d'énergétique et de mécanique
théorique et appliquée**
2 Avenue de la Forêt de Haye
BP160
54504 Vandœuvre-lès-Nancy

Université de Lorraine
34 cours Léopold
54 000 Nancy

THESE

présentée en vue de l'obtention du grade de

Docteur de l'Université de Lorraine

spécialité

Mécanique et Energétique

**Etude des Mécanismes de Transfert des Nanoparticules au
travers d'une Barrière de Confinement Dynamique**

par

Vincent CESARD

Directeur de thèse : **Anne TANIÈRE** MDC et HDR UL
Co-Directeur de thèse : **Nicolas RIMBERT** MDC UL

Soutenue publiquement le 16 novembre 2012, devant le jury composé de :

Président : **Markus ABEL** Professeur Université de Lorraine

Rapporteurs : **Gerhard KASPER** Professeur KIT, Allemagne
Evelyne GEHIN Professeur CERTES, Paris Est Créteil

Examineurs :
Emmanuel BELUT Chargé d'étude INRS, Vandœuvre-lès-Nancy
Anne TANIÈRE MDC et HDR Université de Lorraine
Nicolas RIMBERT MDC Université de Lorraine

Invités :
Jean-Raymond FONTAINE Chargé d'étude INRS, Vandœuvre-lès-Nancy
Corinne PREVOST Chargé d'étude IRSN, Saclay

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mes deux directeurs de thèse, M. Benoit Oesterlé d'abord puisqu'il m'a permis de faire cette thèse et ensuite M^{me} Anne Tanière d'avoir accepté de poursuivre l'encadrement et donc me donner la possibilité de finir mon travail dans de bonnes conditions. Je remercie également mon co-directeur de thèse, M. Nicolas Rimbert pour son suivi et le regard différent qu'il a apporté tout au long de la thèse.

Mes remerciements vont tout particulièrement à deux personnes, M. Emmanuel Belut (INRS) et M^{me} Corinne Prevost (IRSN) pour l'aide et le soutien qu'ils m'ont apporté durant ces trois années de thèse. C'est grâce à eux si ces trois années m'ont permis d'autant progressé. Ils m'ont laissé une liberté de mouvements importante tout en ayant un regard critique sur les différents résultats obtenus. J'ai pu également voyager en France et dans le monde pour présenter mes travaux dans de nombreuses occasions. Je tiens à les remercier pour tout cela.

Je voudrais maintenant remercier les membres du jury, à commencer par les deux rapporteurs de ma thèse : M^{me} Evelyne Géhin et M. Kasper Gerhard. Je les remercie d'avoir pris du temps pour lire et donner leur avis sur mon travail. Je remercie le président du jury, M. Markus Abel qui a su détendre l'atmosphère lors de la soutenance.

Je souhaite remercier les membres des laboratoires et les personnes avec qui j'ai travaillé quotidiennement ou ponctuellement :

- le SERAC (devenu SAC) de l'IRSN avec notamment Laurent Bouilloux ;
- le laboratoire IA de l'INRS dans sa totalité, j'ai passé trois bonnes années en compagnie des deux Francis, de Roland, de François-Xavier, de Robert, de Jean-Raymond, de Laurence, de Florent, de Fatna, de Jean-Claude et de Romain. Je les remercie pour leur aide, pour leur bonne humeur et les discussions que l'on a pu avoir au cours des nombreuses pauses café.

Je remercie bien entendu toutes les personnes qui ont participé de pré ou de loin au bon déroulement de ma thèse.

Plus personnellement, je tiens à remercier ma famille et mes proches pour leur soutien de tous les jours.

à Liam,

Table des matières

Liste des figures	1
Liste des tableaux	7
Liste des symboles	9
Introduction.....	13
Revue Bibliographique.....	21
Chapitre I. Les dispositifs de confinement dynamique	23
Chapitre II. Etat de l'art	25
Partie expérimentale.....	37
Chapitre I. Matériels et méthodes	39
I.1 Principes de mesure et protocole opératoire	39
1. Approche basée sur la mesure de la distribution granulométrique (banc INRS)	39
2. Approche basée sur la détection de la fluorescence de l'échantillon (banc IRSN)	45
I.2 Les dispositifs étudiés.....	46
1. Banc INRS : un Poste de Sécurité Microbiologique	46
2. Banc IRSN : une sorbonne « maison »	46
I.3 La génération des nanoparticules.....	47
1. La nébulisation	47
L'électro-corrosion.....	49
I.4 Les appareils de détection particulaire	50
1. Mesure de la distribution granulométrique	50
2. Mesure de la fluorescence de l'échantillon	58
I.5 Génération et détection du gaz traceur	59
Chapitre II. Mise au point des protocoles expérimentaux.....	61
II.1 Essais inspirés par l'essai de type par dispersion d'iodure de potassium (KI-Discus)....	61
II.2 Configurations expérimentales adaptées à la détection de la fluorescence	71
Chapitre III. Optimisation du protocole INRS.....	73
III.1 Améliorations apportées sur la base des résultats préliminaires	73
III.2 Résultats intermédiaires	76
III.3 Méthode expérimentale optimisée	81
Chapitre IV. Résultats et conclusions.....	84
IV.1 Caractéristiques des aérosols tests et du gaz traceur	84
IV.2 Approche basée sur la détection de fluorescence	86
1. Situations testées à une ouverture de 0,4 m.....	87
2. Situations testées à une ouverture de 0,2 m et 0,6 m.....	88
3. Corrélation entre les coefficients de rétrodiffusion gazeux et nanoparticulaires	90
4. Résultats complémentaires sur le dépôt	92
IV.3 Approche basée sur la mesure de la distribution granulométrique	94
1. Configuration de base	94
2. Configuration avec le mannequin.....	96
3. Configuration avec la plaque mobile	98
IV.4 Conclusions	105
Partie numérique	107
Chapitre I. Modélisation des écoulements diphasiques	109

I.1	Méthodes de résolution de la phase fluide	110
I.2	Méthodes de résolution de la phase particulaire	111
I.3	Modélisation du transport des nanoparticules	112
I.4	Modélisation du dépôt des nanoparticules	113
Chapitre II.	Choix de résolution numérique	119
II.1	Implantation dans Ansys Fluent.....	119
1.	Modèles à implanter dans le code CFD	119
2.	Description du logiciel de CFD	119
3.	Implantation	120
Chapitre III.	Etude qualitative et quantitative de l'environnement expérimental	121
III.1	Conditions de simulations	121
1.	Géométrie et maillage	121
2.	Modèle de turbulence	122
III.2	Résultats numériques.....	123
1.	Champs de vitesses moyennes	123
2.	Simulation du transfert du nanoaérosol et du gaz traceur	125
3.	Simulation du dépôt des nanoparticules	129
III.3	Confrontation aux résultats expérimentaux.....	131
Chapitre IV.	Conclusion sur le modèle	133
Conclusions et perspectives		135
Références Bibliographiques		139

Liste des figures

Introduction

figure 0-1 : Impact économique des nanotechnologies en 2010	15
figure 0-2 : Valeur du marché des nanotechnologies selon Lux Research Inc. (HesaMag, 2009).....	16
figure 0-3 : Le « nanomonde » (CEA, 2012).....	17
figure 0-4 : Prédiction du dépôt total et régional des particules dans les voies respiratoires chez l'Homme en fonction de la taille des particules. Le sujet est considéré comme respirant majoritairement par la bouche (pointillés) ou par le nez (ligne continue) et effectuant un travail « standard » (Source Witschger et Fabriès, 2005)	18

Revue Bibliographique

figure 1-1 : Schémas généraux d'une sorbonne (gauche, INRS ED 795, 2009) et d'un PSM de type II (Droite, INRS ND 2201-193-03, 2003).....	24
figure 1-2 : Fuite de SF ₆ en fonction de la vitesse à l'ouverture (Johnson et Fletcher, 1996)	27
figure 1-3 : (a) fuites de SF ₆ en fonction de la position du sujet humain pour une vitesse de 1,4 m.s ⁻¹ et (b) fuites de SF ₆ en fonction de la vitesse lors de déplacement (Johnson et Fletcher, 1996).....	27
figure 1-4 : Traçage au fumigène autour de la zone respiratoire d'un mannequin après (a) l'ouverture de la guillotine et (b) pendant le déplacement d'une personne (Tseng <i>et al.</i> , 2007a)	28
figure 1-5 : Histogramme temporel des fuites de SF ₆ autour de la zone respiratoire d'un mannequin après (a) l'ouverture de la guillotine et (b) pendant le déplacement d'une personne (Tseng <i>et al.</i> , 2007a).....	28
figure 1-6 : Positionnement des points de prélèvements et de la source avec et sans mannequin.....	29
figure 1-7 : Localisation des points de mesure pour chacune des techniques (Prevost <i>et al.</i> , 1998a)	30
figure 1-8 : Evolution de la vitesse normale en fonction de la position dans l'ouverture (h=400 mm et V=0,5 m.s ⁻¹); haut : sans mannequin et bas : avec mannequin (Prévost <i>et al.</i> , 1998a).....	31
figure 1-9 : Evolution de la rétrodiffusion d'un aérosol de diamètre médian massique de 0,15 µm (gauche) et de 5 µm (droite) (Prévost <i>et al.</i> , 1998b)	32
figure 1-10 : Influence de la nature du polluant ainsi que de la vitesse moyenne dans l'ouverture ; répartition des points de mesure dans l'ouverture	33

figure 1-11 : Photos des techniques de manipulation- a) transfert b) transvasement (Tsai <i>et al.</i> , 2009a).....	34
figure 1-12 : Illustration des points de mesure dans et hors de la hotte (Tsai <i>et al.</i> , 2009a)	35
figure 1-13 : Mesure au niveau de la zone respiratoire lors de la manipulation de 100 g de nanoalumine a) transfert b) transvasement	35

Partie expérimentale

figure 2-1 : Distribution granulométrique d'un aérosol en zone urbaine (Jaenicke, 1993)	40
figure 2-2 : Fonctionnement général de la salle propre (gauche), vue de la salle propre (droite).....	42
figure 2-3 : Répartition des points de mesure de la vitesse en sortie de diffuseurs .	44
figure 2-4 : Valeurs du débit et des vitesses verticales pour chaque plenum soufflant	45
figure 2-5 : Principe de fonctionnement de la sorbonne étudiée.....	47
figure 2-6 : Principe de génération par nébulisation	48
figure 2-7 : Distribution granulométrique obtenue pour différents débits d'air et pour une solution de NaCl concentrée à 0,1% en masse	48
figure 2-8 : Schéma de la chambre de génération du PALAS GFG-1000	49
figure 2-9 : Façade du PALAS GFG-1000	50
figure 2-10 : Schéma d'un impacteur.....	52
figure 2-11 : Répartition des charges en fonction de la taille des particules après passage au voisinage d'une source d'ions bipolaires	53
figure 2-12 : Schéma de la sélection de l'aérosol monodispersé.....	54
figure 2-13 : Tension à appliquer entre les électrodes de la colonne moyenne du DMA en fonction du diamètre de la particule sélectionnée et du nombre de charges portées (N=1 ou N=2).....	55
figure 2-14 : Evolution du rapport des concentrations en nombre r des particules portant -2 charges par rapport aux particules portant -1 charge en fonction du diamètre de mobilité électrique des particules sélectionnées au sein du DMA- cas d'un aérosol initial polydispersé de diamètre médian en nombre 100 nm et un écart-type géométrique 2 (Bau, 2008)	56
figure 2-15 : Principe de mesure d'un CNC	57
figure 2-16 : Principe de mesure de la fluorescence	59
figure 2-17 : Représentation schématique du fonctionnement d'un spectromètre à infrarouge	60
figure 2-18 : Pénétration des particules dans les tubes de prélèvement en fonction de leur diamètre.....	63
figure 2-19 : Schéma de l'installation (gauche) et photographie du dispositif de dispersion (droite).....	64
figure 2-20 : Distributions granulométriques pour chaque essai.....	65

figure 2-21 : Banc de caractérisation	66
figure 2-22 : Valeurs de Ra moyens sur les trois derniers essais et pour les point L, C et R	68
figure 2-23 : Grille expérimentale de prélèvement.....	71
figure 2-24 : Injection gaz et aérosol	72
figure 2-25 : Fonctionnement du PSM avant modification (a) et après modification (b)	74
figure 2-26 : Position du diffuseur conique dans le PSM	75
figure 2-27 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion K_{nano} en fonction du diamètre des particules et pour les trois points évalués	77
figure 2-28 : Niveaux de concentration pour la source et les différents points de mesure ainsi que la limite entre les deux méthodes de fonctionnement du CNC	78
figure 2-29 : Schéma du banc de caractérisation après ajout du diluteur	79
figure 2-30 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion K_{nano} en fonction du diamètre des particules et pour les trois points évalués après ajout du diluteur	80
figure 2-31 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion K_{nano} (points) en fonction du diamètre des particules et valeurs gaz K_{gaz} (trait continu) équivalentes pour les trois points évalués après ajout du diluteur	80
figure 2-32 : Banc expérimental définitif	81
figure 2-33 : Positions des points de mesure (numérotés de 1 à 15) et de la source	82
figure 2-34 : PSM en présence du mannequin (a) et avec le système de déplacement d'une plaque (b)	82
figure 2-35 : Distributions granulométriques moyennes pour chaque type d'aérosol produit à la source	84
figure 2-36 : Clichés à gauche, de nanoparticules de NaCl obtenu par un microscope électronique à balayage et à droite, de nanoparticules de Cu obtenu par un microscope électronique à transmission.....	86
figure 2-37 : Répartition des points de mesure dans l'ouverture	87
figure 2-38 : Coefficients de rétrodiffusion pour une vitesse d'aspiration $v=0,4 \text{ m.s}^{-1}$: (a) sans mannequin et (b) avec mannequin	88
figure 2-39 : Coefficients de rétrodiffusion pour une hauteur de 0,6 m et une vitesse d'aspiration $v=0,4 \text{ m.s}^{-1}$ (a) et $v=1 \text{ m.s}^{-1}$ (b)	89
figure 2-40 : Répartition de la vitesse normale à l'ouverture pour une hauteur de 0,6 m et deux vitesses nominales : $v=0,4 \text{ m.s}^{-1}$ (a) et $v=1 \text{ m.s}^{-1}$ (b).....	90
figure 2-41 : Corrélation de la rétrodiffusion gaz/nanoparticules	91
figure 2-42 : Distribution granulométrique et massique d'un aérosol de fluorescéine	92
figure 2-43 : Distributions granulométriques des aérosols de NaCl (1), de Cu (2) et de fluorescéine (3) observées aux points de mesure et au niveau de l'émission pour les deux jours d'essai en configuration de base	95
figure 2-44 : Evolution de la concentration gazeuse au cours du temps en différents points pour les deux jours d'essai en configuration de base ; le gaz est émis en simultané aux aérosols de NaCl (1), de Cu (2) et de fluorescéine (3)	96

figure 2-45 : Distributions granulométriques des aérosols de NaCl (1) et de Cu (2) observées aux points de mesure et au niveau de l'émission pour les deux jours d'essai en configuration avec le mannequin	97
figure 2-46 : Evolution de la concentration gazeuse au cours du temps en différents points pour les deux jours d'essai en configuration avec le mannequin, gaz émis simultanément aux aérosols de NaCl (1) et de Cu (2).....	98
figure 2-47 : Distributions granulométriques des aérosols de NaCl (1) et de Cu (2) observées aux points de mesure 3, 8 et 13, au niveau de l'émission, pour les deux jours d'essai en configuration testée avec la plaque mobile	99
figure 2-48 : Evolution de la concentration gazeuse au cours du temps en différents points pour les deux jours d'essai en présence de la plaque mobile, le gaz étant émis simultanément avec les aérosols de NaCl (1) et de Cu (2).....	100
figure 2-49 : Cartographie des fuites de nanoparticules tracées à partir des concentrations mesurées en nombre aux 15 points pour le NaCl (1) et pour le Cu (2)	101
figure 2-50 : Cartographie des fuites de gaz tracées à partir des concentrations mesurées en ppm aux 15 points pour le cas du NaCl (1) et pour le cas du Cu (2). 101	101
figure 2-51 : Evolution de la concentration en gaz pour les deux points 7 et 14 pendant trois allers-retours de la plaque.....	102
figure 2-52 : Corrélation de la rétrodiffusion gaz/nanoparticules	104

Partie numérique

figure 3-1 : Vitesse de dépôt adimensionnée en fonction du temps de relaxation adimensionné des particules, pour des parois verticales (Tian et Ahmadi, 2006) ..	115
figure 3-2 : Géométrie complexe de l'environnement de travail.....	121
figure 3-3 : Géométrie simplifiée de l'environnement de travail et maillage	122
figure 3-4 : Intensités des vitesses moyennes dans l'ouverture du PSM.....	123
figure 3-5 : Cartographie vectorielle des vitesses, vue de côté du PSM.....	124
figure 3-6 : Implantation des plans $x=0$, $x=-0,2$ m et $x=-0,5$ m dans l'espace de travail	125
figure 3-7 : Champs de vitesses dans le volume complet pour $x=0$, $x=-0,2$ m et $x=-0,5$ m ($x=0$ étant l'axe du jet ou le milieu de la salle blanche dans le sens de la profondeur).....	125
figure 3-8 : Positions du cône d'émission et des points de mesure	126
figure 3-9 : Vue de côté de l'évolution des profils de concentration pour les quatre traceurs dans le plan $x = 0$	127
figure 3-10 : Vue de face de l'évolution des profils de la concentration pour les quatre traceurs dans le plan de mesure (soit 0,05 m en retrait de l'ouverture).....	127
figure 3-11 : Différentes vues de surfaces isoconcentrations allant de 10^{-4} à 1 (du plus clair au plus foncé) : en haut $dp = 42,6$ nm et en bas le gaz traceur	128
figure 3-12 : Coefficients de rétrodiffusion pour les trois points de mesure et les deux aérocontaminants	129

figure 3-13 : Répartition du dépôt sur l'ensemble du domaine pour trois gammes de diamètres, de gauche à droite : $dp = 11,1 \text{ nm}$ et $dp = 42,6 \text{ nm}$ et $dp = 111,9 \text{ nm}$	130
figure 3-14 : Répartition du dépôt dans l'enceinte et sur le cône de diffusion pour trois gammes de diamètres, de gauche à droite : $dp = 11,1 \text{ nm}$ et $dp = 42,6 \text{ nm}$ et $dp = 111,9 \text{ nm}$	130
Figure 3-15 : Coefficients de rétrodiffusion nanoparticulaire obtenus expérimentalement et numériquement	131
figure 3-16 : Coefficients de rétrodiffusion gazeux obtenus expérimentalement et numériquement.....	132
figure 3-17 : Valeurs des $\gamma +$ sur la vitre de protection	133
figure 3-18 : Valeurs négatives de la concentration adimensionnée correspondant à un diamètre $dp = 11,1 \text{ nm}$ dans le plan $x=0$	134

Liste des tableaux

Revue Bibliographique

tableau 1-1 : Concentration en SF ₆ selon la méthode modifiée (Tseng <i>et al.</i> , 2007b)	29
--	----

Partie expérimentale

tableau 2-1 : Paramètres pour le modèle des distributions des aérosols exprimées en fonction de trois lois log-normales	40
tableau 2-2 : Limites de concentration pour la salle propre de classe ISO 4	41
tableau 2-3 : Concentrations particulières résiduelles	42
tableau 2-4 : Dimensions, vitesses et débits de référence du PSM.....	46
tableau 2-5 : Coefficients $ai(N)$	52
tableau 2-6 : Caractéristiques de quelques compteurs à noyaux de condensation standards.....	57
tableau 2-7 : Grandeurs caractéristiques des aérosols générés.....	65
tableau 2-8 : Concentrations en nombre, valeurs d'erreurs et rapports signal/bruit de fond pour chaque situation et pour les trois premiers essais	69
tableau 2-9 : Concentrations en nombre, valeurs d'erreurs et rapports signal/bruit de fond pour chaque situation et pour les trois derniers essais	70
tableau 2-10 : Configurations d'essai de la sorbonne	72
tableau 2-11 : Mesures aérauliques avant et après les modifications sur le PSM ...	74
tableau 2-12 : Débits et facteur de dilution (PALAS)	79
tableau 2-13 : Données concernant les aérosols produits et le gaz traceur	85
tableau 2-14 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion en s.m ⁻³ pour les deux aérocontaminants	88
tableau 2-15 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion en s.m ⁻³ pour les deux aérocontaminants	89
tableau 2-16 : Corrélation entre la rétrodiffusion du gaz et celle de l'aérosol de fluorescéine	91
tableau 2-17 : Dépôt sur chaque surface et pour chaque configuration	93
tableau 2-18 : Conditions climatiques des essais	94
tableau 2-19 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion pour chaque configuration et pour chaque polluant moyennées sur les deux jours d'essais.....	103
tableau 2-20 : Corrélation entre la rétrodiffusion du gaz et celle des différents aérosols	105

Partie numérique

tableau 3-1 : Diversité des modélisations rencontrées en CFD dans des travaux multiphasiques se rapportant aux particules peu inertielles (d'après Nerisson, 2009)	109
tableau 3-2 : Valeurs de κ et ε aux différentes conditions limites.....	123
tableau 3-3 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion moyennés sur tous les diamètres et du ratio $K_{\text{nano}}/K_{\text{gaz}}$	129
tableau 3-4 : Nombre de particules déposées par unité de temps pour trois diamètres distincts	131

Liste des symboles

Les indices f et p désignent respectivement le fluide et les particules. Les vecteurs sont surmontés d'une flèche et les unités relatives à ceux-ci correspondent aux unités de leur norme. Pour la suite, (-) signifie sans dimension et (α) signifie qu'il existe plusieurs unités selon le type de mesure considéré : ppm, part.m^{-3} ou encore g.m^{-3} .

Lettres latines

\vec{V}_{bal}	vecteur vitesse de l'air insufflé	(m.s^{-1})
\vec{V}_p	vecteur vitesse d'une particule	(m.s^{-1})
C_{bulk}	concentration loin de la paroi	(part.cm^{-3})
C_C	coefficient de Cunningham	(-)
C_F	coefficient de confinement	(-)
C_{in}	concentration en nombre à l'entrée de la conduite	(part.m^{-3})
C_{ms}	concentration molaire d'uranine en solution	(mol.L^{-1})
C_{out}	concentration en nombre à la sortie de la conduite	(part.m^{-3})
C_p	concentration de polluant hors de l'enceinte au point p	(α)
C_p^A	concentration résiduelle de polluant hors de l'enceinte au point p	(α)
C_{PSM}	concentration de polluant dans le PSM	(α)
C_{PSM}^A	concentration résiduelle de polluant dans le PSM	(α)
$d_{50\%}$	diamètre de coupure	(m)
D_B	diffusion brownienne	($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
$D_{f,ik}^t$	tenseur de diffusion turbulente du fluide	($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
D_H	diamètre hydraulique	(m)
d_m	diamètre médian	(m)
$D_{p,ik}^t$	tenseur de diffusion turbulente des particules	($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
d_p	diamètre d'une particule	(m)

d_p^+	diamètre de particule adimensionné	(-)
F_i	composante i des forces extérieures	(N.kg ⁻¹)
F_{PO}	facteur de protection	(-)
g^+	constante d'accélération gravitationnelle adimensionnée	(-)
I_0	flux lumineux incident	(lumen)
I_t	flux lumineux transmis	(lumen)
K_b	constante de Boltzmann	(m ² .kg.s ⁻² .k ⁻¹)
K_{gaz}	coefficient de rétrodiffusion pour un gaz traceur	(s.m ⁻³)
K_n	nombre de Knudsen	(-)
K_{nano}	coefficient de rétrodiffusion pour un nanoaérosol	(s.m ⁻³)
L_{DMA}	longueur colonne DMA	(m)
n_N^0	distribution granulométrique d'un aérosol atmosphérique	(-)
p	pression fluctuante du fluide	(Pa)
P_{air}	pression d'air en entrée du PALAS GFG1000	(bar)
P_{ar}	pression d'argon en entrée du PALAS GFG1000	(bar)
Q_{bal}	débit volumique de balayage de la colonne DMA	(m ³ .s ⁻¹)
Q_S	débit de particules de référence	(part.s ⁻¹)
r_1	rayon intérieur électrode DMA	(m)
r_2	rayon extérieur électrode DMA	(m)
S^+	distance d'arrêt adimensionnée	(-)
S_{cB}	nombre de Schmidt brownien	(-)
S_{tk}	nombre de Stokes	(m)
u^*	vitesse de frottement	(m.s ⁻¹)
U_0	vitesse moyenne de l'air	(m.s ⁻¹)
$u_{f,i}$	composante i de la vitesse instantanée du fluide	(m.s ⁻¹)
$U_{f,i}$	composante i de la vitesse moyenne du fluide	(m.s ⁻¹)

u_i	composante i de la vitesse fluctuante du fluide	$(m.s^{-1})$
U_m	vitesse moyenne de l'air en conduite	$(m.s^{-1})$
$V_{dilution}$	volume de dilution d'eau ammoniacuée	(L)
x_i	composante i des coordonnées	(m)
y^+	distance adimensionnée à la paroi	(m)
Z_p	mobilité électrique d'une particule	$(m^2.V^{-1}.s^{-1})$
N_{nano}	concentration en nombre dans la gamme nanométrique	$(part.m^{-3})$
n_{nano}	concentration en nombre dans la gamme nanométrique	$(part.m^{-3})$
\mathcal{V}_d	vitesse de dépôt	$(m.s^{-1})$
\mathcal{V}_d^+	vitesse de dépôt adimensionnée	(-)
e	charge élémentaire	(C)
E	intensité du champs électrique	$(V.m^{-1})$
g	constante d'accélération gravitationnelle	$(m^2.s^{-1})$
$g(N)$	distribution des charges électriques	(-)
I	intensité turbulente	(-)
J	flux de particules vers la paroi	$(m^{-2}.s^{-1})$
k	énergie cinétique de turbulence	$(m^2.s^{-2})$
l	longueur du trajet optique	(cm)
m	masse d'uranine	(g)
N	nombre de charges élémentaires	(-)
p	pression instantanée du fluide	(Pa)
P	pression moyenne du fluide	(Pa)
Q	débit volumique d'air extrait	$(m^3.s^{-1})$
q	débit volumique de polluant	$(m^3.s^{-1})$
R	rayon de passage	(m)
Ra	rapport de contamination	(-)
T	température	(K)

t	temps	(s)
U	différence de potentiel inter-électrode du DMA	(V)
y	distance à la paroi	(m)
f	fréquence d'étincelle	(Hz)

Lettres grecques

ϵ_m	coefficient d'extinction molaire	(L.mol ⁻¹ .cm ⁻¹)
ν	viscosité dynamique du fluide	(Pa.s)
ρ	masse volumique du fluide	(kg.m ⁻³)
σ_{geo}	écart-type géométrique	(-)
Sc_t	Nombre de Schmidt turbulent	(-)
τ_p	temps de relaxation d'une particule	(s)
τ_p^+	temps de relaxation adimensionné d'une particule	(-)
ν	viscosité cinématique du fluide	(m ² .s ⁻¹)
η	rendement quantique	(-)
C_{gaz}	concentration en gaz traceur hors de l'enceinte	(ppm)
ϵ	dissipation turbulente	(m ² .s ⁻³)
κ	constante de Von Karman	(-)
	libre parcours moyen des particules	(m)

Introduction

Les nanotechnologies recouvrent un grand nombre de domaines technologiques ayant pour dénominateur commun la taille nanométrique des structures. Parmi les domaines d'application, on peut citer par exemple l'électronique, les technologies de l'information et de la communication, la recherche médicale et les cosmétiques (figure 0-1), qui font appel à des structures de plus en plus petites, atteignant la taille nanométrique. Selon les analystes, le marché mondial des nanotechnologies représentera entre 750 et 2 000 milliards d'euros d'ici 2015 et 10 millions d'emplois liés aux nanotechnologies seront créés d'ici 2014, soit 10 % de la totalité des emplois des industries manufacturières dans le monde (Tinker, 2001 ; NSF, 2001 ; OCDE, 2003 ; Lux Research Inc., 2008) (figure 0-2). Les perspectives économiques justifient les considérables efforts de recherche et de développement sur les nanotechnologies. Ainsi, le soutien de la Commission Européenne (CE, 2007) aux programmes-cadres communautaires ne cesse de croître, passant de 1,4 milliards d'euros pour la période 2003-2006 (4 ans) à 1,1 milliards pour la période 2007-2008 (2 ans).

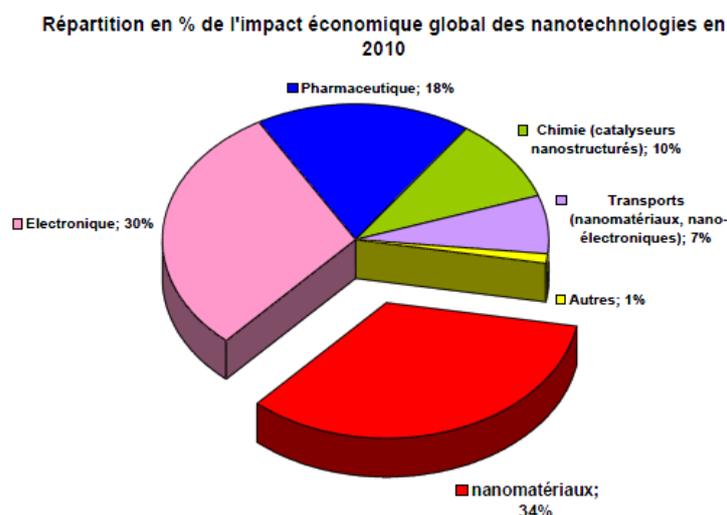


figure 0-1 : Impact économique des nanotechnologies en 2010

Un rapport récent (The Royal Society and the Royal Academy of Engineering, 2004) estime que la quantité de nanomatériaux produite annuellement devrait être de l'ordre de 58 000 tonnes à l'horizon 2011. La France n'est pas en reste puisque deux analyses menées, d'une part par l'INRS (HST ND 2277-209-07, 2007), d'autre part par l'AFSSET (2008), devenue entre temps l'ANSES, ont permis d'établir le recensement suivant :

- près de 485 000 tonnes de silice impliquant environ 1 300 opérateurs,
- 469 000 tonnes d'alumine (1 000 opérateurs),
- 300 000 tonnes de carbonate de calcium,
- 240 000 tonnes de noir de carbone (280 opérateurs),
- 250 000 tonnes de dioxyde de titane sous forme submicronique et 10 000 tonnes sous forme de nanoparticules (270 opérateurs),
- la capacité de production française annuelle de nanotubes de carbone est de 10 tonnes (10 opérateurs).

Ainsi, quelques milliers d'emplois sont liés en France à la production de nanomatériaux. Toujours selon les mêmes analyses, les personnels des laboratoires de recherche, potentiellement exposés à des nanomatériaux manufacturés, seraient de l'ordre de 7 000, et ce nombre serait croissant.

Les nanomatériaux regroupent les matériaux de taille nanométrique. Ils sont constitués de particules nanostructurées dont les éléments constitutifs ont au moins une dimension inférieure à 100 nm (BSI, 2005 ; ASTM, 2006 ; ISO/TS 27687, 2008 ; CE, 2011). Cette dimension nanométrique leur confère des propriétés physiques, chimiques ou biologiques particulières (AFNOR, 2007 ; AFSSET, 2008). Pour illustration, les dimensions d'une nanoparticule sont très proches de celles d'un virus voire de celles d'un brin d'ADN (figure 0-3).

L'explosion de la production de nanomatériaux engendre une exposition accrue des personnes et de l'environnement face à des nanoparticules, dont la toxicité est peu ou pas connue.

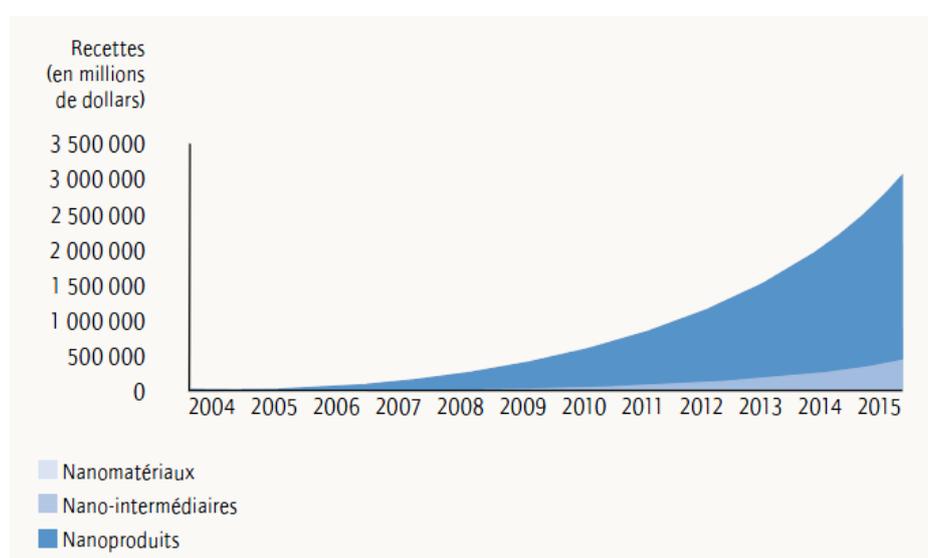


figure 0-2 : Valeur du marché des nanotechnologies selon Lux Research Inc. (HesaMag, 2009)

Même si les connaissances actuelles ne permettent pas d'établir de lien direct entre l'exposition à certaines nanoparticules manufacturées et des effets indésirables sur l'environnement ou la santé, certains résultats toxicologiques obtenus récemment, soulèvent de nombreuses questions. En effet, selon certains chercheurs, la corrélation classiquement établie entre la masse de produit auquel l'Homme est exposé et l'intensité de l'effet indésirable (s'il existe) ne serait plus pertinente (Hervé-Bazin *et al.*, 2007 ; Maynard *et al.*, 2005 ; Oberdöster *et al.*, 2005). En d'autres termes, la masse de produit n'est plus le critère le plus pertinent pour l'interprétation des résultats de toxicité. Les nanomatériaux dans leur ensemble ont connu un énorme succès car, à masse équivalente les propriétés physico-chimiques qui s'expriment à cette échelle (figure 0-3) sont différentes de celles des mêmes matériaux, structurés d'éléments de tailles supérieures. Lorsque la taille d'une particule diminue, le nombre de particules par gramme croît considérablement : ce nombre est multiplié par un million lorsque le diamètre d'une particule évolue de 100

nm à 1 nm ; parallèlement, à quantité de matière équivalente, la surface particules/environnement est multipliée par un facteur 100. D'autre part, la diminution du diamètre des particules conduit à une augmentation de la proportion d'atomes présents en surface (5 % des atomes d'une particule de 30 nm sont en surface, contre 20 % pour une particule de 10 nm et 50 % pour une particule de 3 nm) (Schmidt, 2001). Une masse donnée de nanomatériaux sera donc plus réactive que la même masse constituée de particules de plus grandes dimensions.

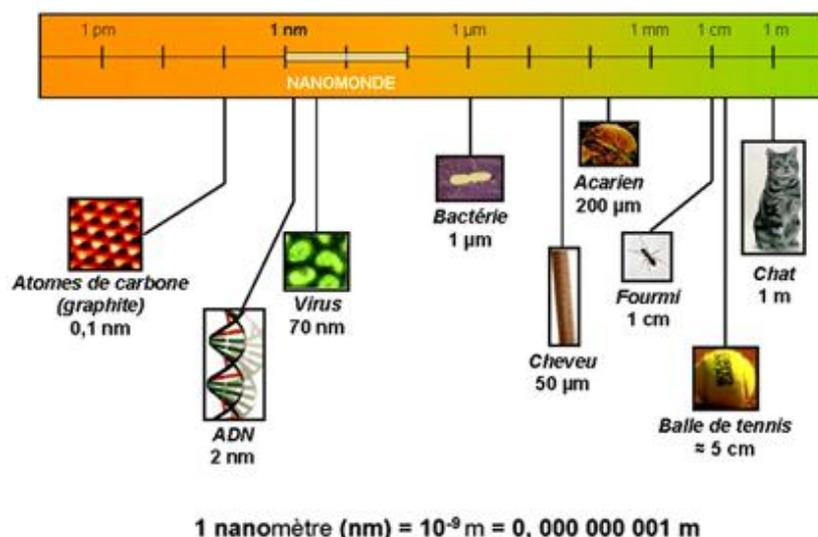


figure 0-3 : Le « nanomonde » (CEA, 2012)

Les connaissances acquises aujourd'hui en nanotoxicologie permettent de dire qu'il existe trois principales voies de pénétration des nanoparticules en cas d'exposition des personnes : la voie pulmonaire (inhalation), la voie cutanée et la voie orale (ingestion). La voie respiratoire est considérée comme étant la plus contaminante, les nanoparticules en suspension dans l'air possèdent effectivement une probabilité de dépôt importante dans les voies aériennes, avec une probabilité non-négligeable de dépôt jusque dans les alvéoles pulmonaires (figure 0-4).

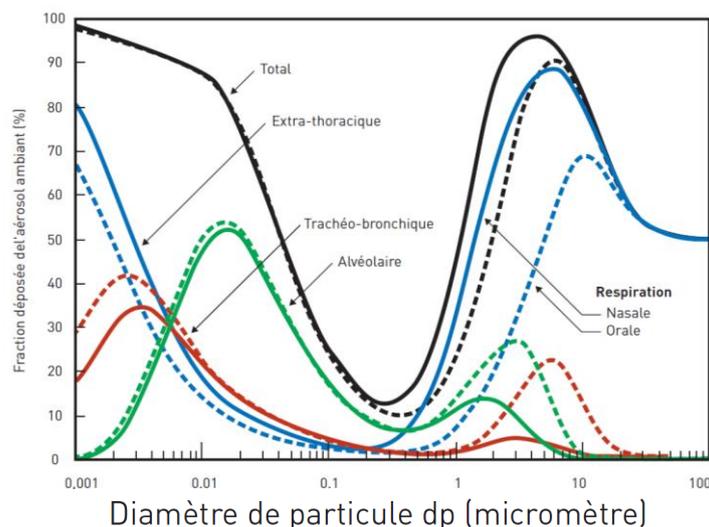


figure 0-4 : Prédiction du dépôt total et régional des particules dans les voies respiratoires chez l'Homme en fonction de la taille des particules. Le sujet est considéré comme respirant majoritairement par la bouche (pointillés) ou par le nez (ligne continue) et effectuant un travail « standard » (Source Witschger et Fabriès, 2005)

La majorité des études portant sur la nanotoxicologie publiées dans la littérature sont issues de tests *in vitro* et les tests menés concernent généralement la toxicité pulmonaire. La question que soulève l'utilisation de tests *in vitro* est de savoir s'ils sont adaptés pour caractériser les risques et l'exposition des personnes en conditions réelles. La taille, la surface spécifique et la charge en surface sont autant d'éléments qui influencent à la fois la distribution des nanoparticules dans l'organisme exposé et la toxicité de ces nanoparticules, aussi bien *in vitro* qu'*in vivo*. Cela implique qu'une attention particulière doit être portée au contrôle des propriétés des nanoparticules lors du développement de nanomatériaux, notamment pour un usage thérapeutique ou diagnostique. Murdock *et al.* (2008) et Warheit *et al.* (2008) pointent aussi le manque de données toxicologiques du fait d'une trop grande quantité de nanomatériaux et de situations à tester. De plus, personne n'est en mesure à l'heure actuelle de fournir les éléments prouvant qu'une personne exposée à un produit composé d'éléments de taille nanométrique ou bien directement à des nanoparticules, dans une situation bien donnée, n'est pas en danger à court ou moyen terme. Ainsi, c'est dans ce contexte qu'il est nécessaire de développer des moyens de protection efficaces vis-à-vis de la manipulation de nanoparticules.

Pour cela, on dispose de différents moyens : la protection individuelle (masque, combinaison ventilée ...) et la protection collective (ventilation générale ou localisée). Cependant, ces techniques de protection se sont révélées adaptées à la production ou l'émission de particules plus grossières ou encore de gaz, et il est légitime de s'interroger sur la validité de tels dispositifs face au risque « nano ». Un nombre important d'études s'attache à caractériser l'efficacité des filtres (Mouret, 2008) ou encore des masques respiratoires (Brochot, 2012). A contrario, on trouve peu d'études présentant des résultats sur les performances de confinement des dispositifs de ventilation (sorbonnes ou autres enceintes ventilées) lors de la manipulation de nanoparticules.

Après avoir présenté les résultats d'études antérieures portant sur l'évaluation de l'efficacité de confinement de différents types d'enceintes ventilées dans la partie

revue bibliographique, nous présenterons les deux approches expérimentales explorées durant les travaux de thèse ainsi que les résultats obtenus en ce qui concerne le confinement d'un aérosol de nanoparticules (partie expérimentale). La partie numérique sera quant à elle dédiée à la description du modèle numérique utilisé pour simuler le banc de confinement développé à l'INRS. Enfin, nous terminerons ce mémoire par une conclusion dans laquelle nous ferons un bilan succinct des résultats observés durant ces trois années et essayerons de dégager des pistes d'améliorations pour des travaux futurs portant sur l'étude du confinement de nanoparticules lors de leur manipulation dans des enceintes ventilées.

Revue Bibliographique

Chapitre I. Les dispositifs de confinement dynamique

Que ce soit dans un but de recherche ou de développement, les actions menées au sein de laboratoires (pesée, nettoyage de réacteurs, transfert de produits chimiques etc...) peuvent être génératrices d'aérocontaminants. Des moyens de protection adaptés doivent être mis en place selon la dangerosité des produits manipulés. C'est d'autant plus vrai dans le cas d'un polluant de taille nanométrique, pour lequel l'inhalation est la principale voie de pénétration dans l'organisme humain. De plus, les connaissances sur les effets toxicologiques induits par l'exposition à des nanoparticules restent parcellaires. Ainsi, au cours des dernières années, de nombreux organismes nationaux, experts dans la prévention des risques au travail, ont publié des guides détaillant les bonnes pratiques à mettre en œuvre lors de la manipulation de nanoparticules (BSI, 2007 ; INRS, 2012 ; University of California Berkeley, 2007 ; IRSST, 2009). Parmi l'ensemble des dispositifs de ventilation locale préconisés, l'usage d'enceintes ventilées (sorbonnes, Poste de Sécurité Microbiologique, ...) est largement évoqué dans ces différents guides. Ces dispositifs constitueraient un moyen de protection adapté pour des opérations de laboratoire, lorsque l'encombrement du procédé le permet.

L'objectif d'un tel dispositif est de protéger l'opérateur manipulant un produit susceptible d'être toxique, au moyen d'une barrière de confinement dynamique. Concrètement, il s'agit de créer une dépression au sein de l'enceinte de travail, générant ainsi un flux d'air dirigé de la zone où se trouve l'opérateur vers la zone d'émission du polluant, ce qui permet de maintenir celui-ci à l'intérieur de l'enceinte avant qu'il ne soit extrait par le réseau de ventilation. En fonction de la nature du produit utilisé, l'air est filtré puis traité avant d'être rejeté vers l'extérieur, ou recyclé partiellement dans l'enceinte après filtration. Il existe de nombreux systèmes plus ou moins complexes que nous détaillons ci-dessous, mais le principe de fonctionnement d'une enceinte ventilée reste toujours le même.

a- La sorbonne est une enceinte ventilée placée en dépression qui aspire l'air dans le local et le rejette dans l'atmosphère extérieure au moyen d'un ventilateur (figure 1-1 ; INRS ED 795, 2009). Il s'agit d'un moyen de protection collective utilisé pour la protection des opérateurs contre les polluants gazeux et particulaires. Leur usage est très répandu. Les sorbonnes possèdent généralement un écran mobile qui permet de régler la surface d'ouverture. Elles peuvent être à débit constant quelle que soit la hauteur d'ouverture ; de ce fait, la vitesse frontale est inversement proportionnelle à la hauteur d'ouverture. D'autres modèles plus évolués sont à débit d'air variable, ce qui permet d'ajuster le débit en fonction de la hauteur d'ouverture et de garder une vitesse frontale constante. On peut également rappeler qu'il existe des variantes aux sorbonnes dites standards, appelées air-curtain hood (littéralement hotte à rideau d'air) qui intègrent un jet d'air dans l'écran mobile, émis verticalement en direction de l'ouverture, de manière à créer un rideau d'air séparant l'extérieur de l'intérieur de

l'enceinte (Huang *et al.*, 2007). Cependant, il est important de rappeler que ces dispositifs ne sont pas considérés comme des sorbonnes au sens de la norme (prEN 14175-3:2003).

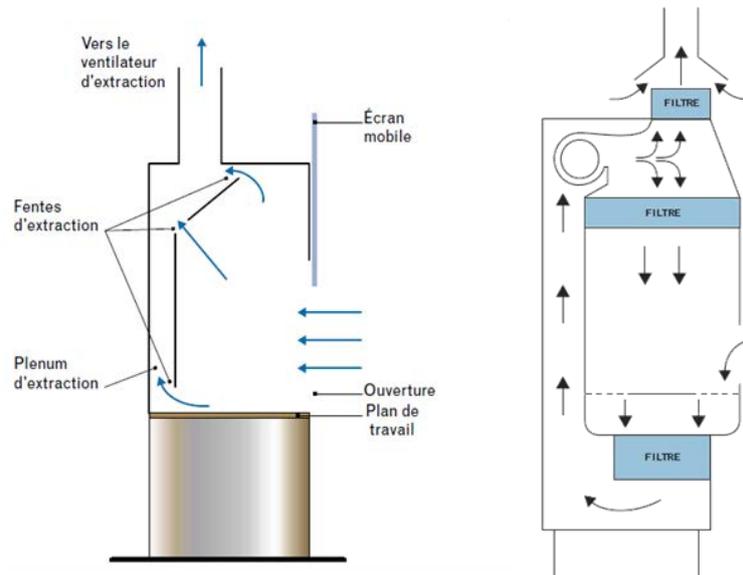


figure 1-1 : Schémas généraux d'une sorbonne (gauche, INRS ED 795, 2009) et d'un PSM de type II (Droite, INRS ND 2201-193-03, 2003)

b- Le poste de sécurité microbiologique (PSM) est un poste de travail destiné à assurer la protection de l'opérateur et de l'environnement contre les dangers liés aux aérosols dans la manipulation de substances biologiquement actives, infectieuses ou dangereuses. Il existe trois types de PSM définis en fonction des objectifs de protection souhaités :

- PSM de type I : le fonctionnement est similaire à celui d'une sorbonne, avec un système de filtration à très haute efficacité intégré dans l'extraction du dispositif, de manière à protéger l'environnement.
- PSM de type II : c'est une variante du PSM de type I. Le concept de base est toujours le même, sauf que l'air extrait est en partie réintroduit dans l'enceinte après filtration, afin de protéger le produit manipulé en plus de l'opérateur (figure 1-1). Cette protection diminue également les contaminations croisées entre deux produits manipulés simultanément.
- PSM de type III : ce dispositif isole le manipulateur puisque ce dernier se trouve totalement en dehors de l'enceinte dans laquelle est manipulé le produit, par l'intermédiaire de gants (manchons souples terminés par des gants). Ceci permet également une protection du produit car il n'est jamais directement en contact avec l'air du laboratoire. La protection de l'environnement est assurée par la filtration de l'air de l'enceinte à travers deux filtres à très haute efficacité disposés en série. Par contre, il n'y a pas de protection contre les contaminations croisées.

Chapitre II. Etat de l'art

Actuellement, afin d'être certifiées conformes en Europe, les enceintes ventilées doivent répondre à certains critères, définis dans les normes prEN 12469:2000 pour les postes de sécurité microbiologiques, et prEN 14175-3:2003 pour les sorbonnes. Les essais de type décrits dans ces deux normes reposent sur l'utilisation de gaz traceur ou d'aérosols micrométriques (cas des PSM). Cependant, de nombreux travaux ont démontré que les essais de type décrits dans ces normes étaient limités car les conditions de mesure définies y sont trop idéales et donc peu représentative de la réalité.

Dans le cas de la norme prEN 14175-3:2003, le local et les conditions générales d'essai sont très précis. La salle d'essai doit avoir les dimensions minimales suivantes : largeur et longueur supérieures ou égales à 4 m et la hauteur du plafond doit être de 2,7 m minimum. Les parois doivent être parfaitement nues. L'alimentation de l'air de compensation doit se trouver à une distance supérieure à 2 m et la vitesse de l'air doit être inférieure à 0.1 m.s^{-1} dans la zone d'essai. Ce ne sont là que quelques exemples mais qui illustrent clairement que les conditions parfaites dans lesquelles sont réalisés les essais de type n'ont rien à voir avec les conditions d'exploitation de la sorbonne installée sur site. L'efficacité de confinement est évaluée en générant un gaz traceur (du SF_6 précisément) dans l'enceinte et en mesurant les concentrations en différents points à l'extérieur de celle-ci. Dans le contexte réglementaire français, la concentration mesurée à l'extérieur ne doit pas excéder 0,1 ppm ; l'efficacité de confinement est représentée par un coefficient de confinement défini comme :

$$C_F = \frac{q}{Q *_{\text{gaz}}} \quad \text{équation I.1}$$

Où q est le débit de gaz traceur émis ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$), Q le débit d'air extrait de la sorbonne ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$) et $_{\text{gaz}}$ la concentration mesurée hors de l'enceinte exprimée en ppm.

Pour sa part, la méthode d'essai de l'efficacité de rétention définie dans la norme prEN 12469:2000 est plus réaliste. Il n'y a aucune indication sur l'environnement dans lequel le test doit être réalisé, mis à part que l'aéroulque du système doit être perturbé par l'ajout d'un cylindre dans l'ouverture du dispositif. L'objectif étant de simuler la présence d'un bras de l'opérateur dans cette même ouverture. L'efficacité de confinement est évaluée en générant dans l'enceinte soit un aérosol d'une suspension de spores microbiologiques, soit un aérosol d'une solution d'iodure de potassium (gouttelettes), et en mesurant le nombre de spores (unité formant colonie) ou de gouttelettes déposés en différents points à l'extérieur de celle-ci. Dans le cas de la méthode à l'iodure de potassium, le facteur de protection dans l'ouverture indique le niveau de protection apporté par le dispositif et s'exprime ainsi :

$$F_{PO} = \frac{NV}{10^4 n} \quad \text{équation 1.2}$$

Où F_{PO} est le facteur de protection dans l'ouverture, sans dimension, N le nombre de particules d'iodure de potassium émis, V le débit d'échantillonnage des préleveurs situés hors de l'enceinte (en $\text{dm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$) et n le nombre de taches d'iodure de potassium sur la membrane de filtration des préleveurs.

De nombreux auteurs ont exploré des domaines d'étude élargis en regard de ceux testés dans les normes (Johnson et Fletcher 1996 ; Tseng *et al.*, 2007a et 2007b ; Nicholson *et al.*, 1999 ; Prévost *et al.*, 1997, 1998a et 1998b) et ont démontré ainsi l'influence de divers paramètres sur les niveaux de performance de ces dispositifs, tels que la vitesse d'air dans l'ouverture, la présence d'un opérateur, la hauteur d'ouverture, le déplacement d'opérateurs devant l'enceinte ou bien encore la nature même du polluant, lesquels n'étaient pas ou peu pris en compte dans les essais de type décrits dans les normes.

Johnson et Fletcher (1996) ont évalué l'influence de la présence d'un opérateur placé devant l'enceinte, sur les profils de vitesse de l'air à l'ouverture, et donc sur l'efficacité de confinement. Les dimensions de l'ouverture de la sorbonne testée étaient de 1,2 m de large et de 0,39 m de haut. Le gaz traceur utilisé pour l'évaluation du confinement était de l'hexafluorure de soufre (SF_6) concentré à 10 % dans de l'azote. Le débit d'émission était alors fixé à $2.4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$. Le gaz était diffusé au travers d'un disque fritté (défini dans la norme BS 7258 Part 4, 1994), centré par rapport à la largeur, et placé à 0,15 m en retrait du plan d'ouverture et 0,15 m en dessous de la partie basse de la guillotine. L'influence des paramètres sur l'efficacité de confinement du dispositif a alors été évaluée pour des vitesses variables dans l'ouverture ($0,1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ à $1,4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$) ; des mannequins 2D et 3D conditionnés à différentes températures (Température ambiante, 25, 30, 33 et 37°C) et un sujet humain ont été placés successivement devant l'ouverture, à différentes distances. Les points de mesure étaient répartis dans l'ouverture en formant un rectangle et en respectant un espacement de 0,15 m des bords de l'ouverture. Les variations des fuites de SF_6 pour différentes situations sont présentées sur la figure 1-2. Dans le cas du mannequin 2D, seuls les tests effectués avec le mannequin chauffé entraînent une augmentation significative de la concentration en gaz aux points de mesure. Les valeurs obtenues avec le mannequin 3D et le sujet humain sont supérieures à la situation sans obstacle, avec une augmentation de l'ordre de 60 % dans le cas du sujet humain. D'après leurs résultats, il faut s'éloigner d'une distance supérieure à 0,6 m pour que l'effet de sillage induit par la présence de l'opérateur devienne négligeable (figure 1-3(a)). Ils ont obtenu les mêmes résultats pour l'ensemble des mannequins testés. Une autre situation étudiée est le déplacement de personnes devant l'enceinte, et ce pour différentes distances. Dans cette configuration, le point de mesure observé est plus intéressant car il se situe en retrait de 0,35 m par rapport à l'ouverture, ce qui signifie que le gaz traceur mesuré à cet

endroit a moins de chance d'être réintroduit dans l'enceinte comparativement aux points observés dans la première situation. La personne se déplace à une vitesse moyenne de l'ordre de $1,8 \text{ m.s}^{-1}$ et effectue six passages espacés de 30 s devant la sorbonne à trois distances respectives : 0,5 ; 0,75 et 1 m. Les résultats moyennés pour chaque distance et en fonction de la vitesse dans l'ouverture sont présentés sur la figure 1-3(b). Les niveaux de concentration atteints sont bien plus faibles que ceux observés dans la situation avec mannequin, ceci s'explique par la différence de positionnement des points de mesure. Ces mesures démontrent l'importance de la vitesse dans l'ouverture ainsi que l'influence de la distance du déplacement sur les fuites de gaz traceur. On voit clairement que pour des vitesses dans l'ouverture inférieures à $0,4 \text{ m.s}^{-1}$, le déplacement d'une personne même à 1 m, induit des perturbations aérauliques suffisantes pour générer des fuites significatives de gaz. On note aussi qu'au-delà d'une distance de 1 m, et pour des vitesses supérieures à $0,4 \text{ m.s}^{-1}$, l'effet du déplacement est négligeable.

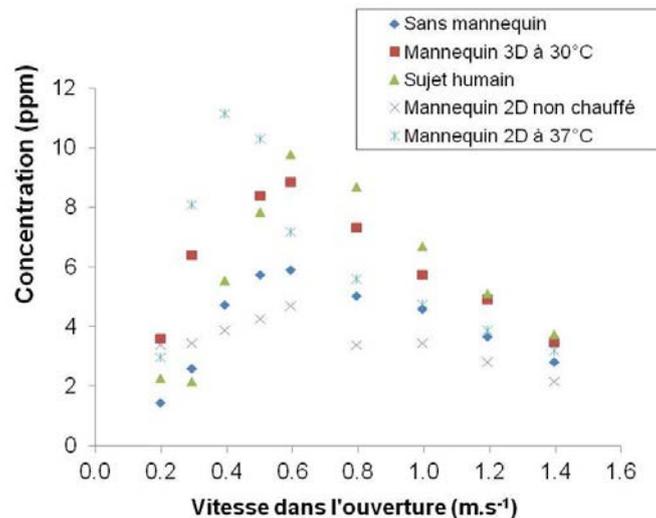


figure 1-2 : Fuite de SF_6 en fonction de la vitesse à l'ouverture (Johnson et Fletcher, 1996)

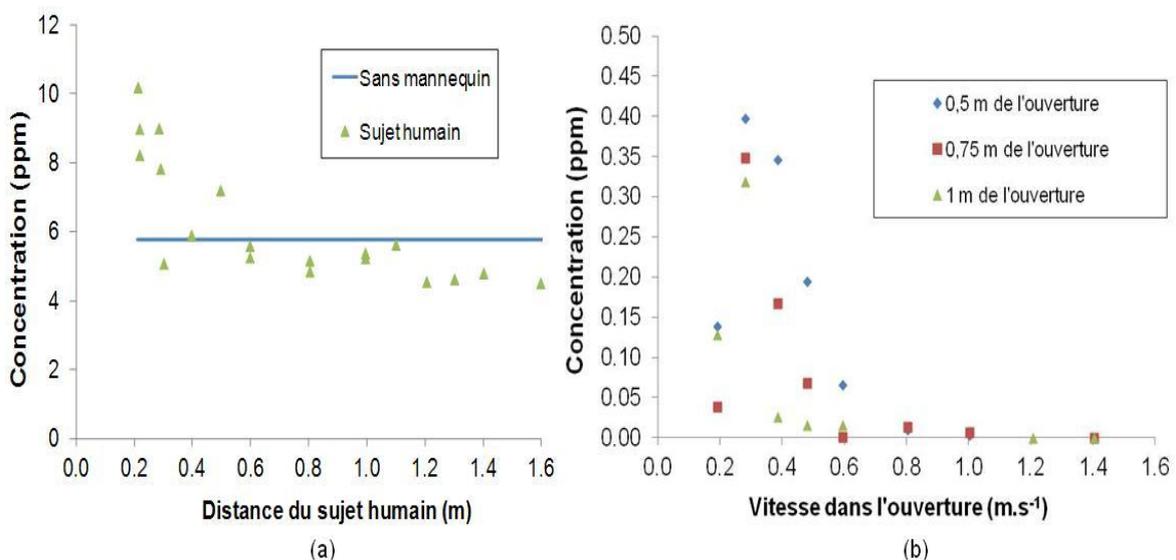


figure 1-3 : (a) fuites de SF_6 en fonction de la position du sujet humain pour une vitesse de $1,4 \text{ m.s}^{-1}$ et (b) fuites de SF_6 en fonction de la vitesse lors de déplacement (Johnson et Fletcher, 1996)

Tseng *et al.* (2007a et 2007b) ont effectué le même type d'essais sur une sorbonne, en s'inspirant de différentes normes (prEN 14175-3 :2003, BS 7258 :1994 et ANSI/ASHRAE 110 :1995). En plus de l'évaluation du confinement à l'aide d'un gaz traceur (SF_6), en combinant un éclairage laser et une émission de fumigène, ils ont pu visualiser les écoulements dans différents plans et identifier les zones de recirculation induites par les perturbations (figure 1-4). Le déplacement d'une personne est ici simulé par une plaque mobile distante de 0,40 m, effectuant des aller-retours devant l'enceinte à une vitesse de 1 m.s^{-1} . Les concentrations en gaz mesurées au niveau de la zone respiratoire en fonction du temps pour deux régimes transitoires, à savoir l'ouverture brusque de la guillotine et le passage de la plaque, sont tracées sur la figure 1-5. Les perturbations engendrées par ces deux actions sont clairement visibles.

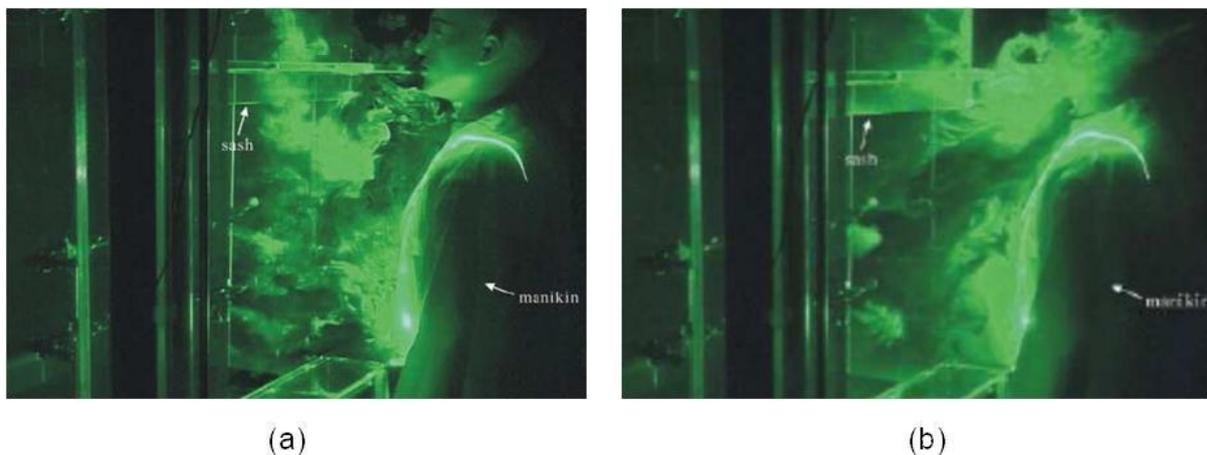


figure 1-4 : Traçage au fumigène autour de la zone respiratoire d'un mannequin après (a) l'ouverture de la guillotine et (b) pendant le déplacement d'une personne (Tseng *et al.*, 2007a)

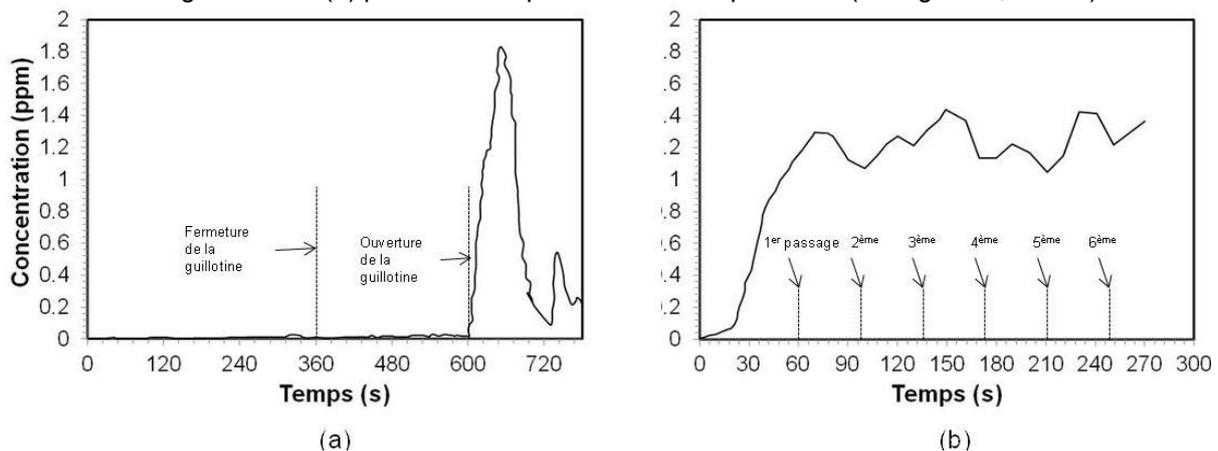


figure 1-5 : Histogramme temporel des fuites de SF_6 autour de la zone respiratoire d'un mannequin après (a) l'ouverture de la guillotine et (b) pendant le déplacement d'une personne (Tseng *et al.*, 2007a)

Ils ont également comparé, dans une deuxième étude, les résultats obtenus en respectant les protocoles décrits dans les différentes normes (Tseng *et al.*, 2007b) pour évaluer l'impact du positionnement de la source et des points de mesure sur les fuites observées. Ceci leur a permis de définir une méthode modifiée, largement inspirée des essais de type (figure 1-6).

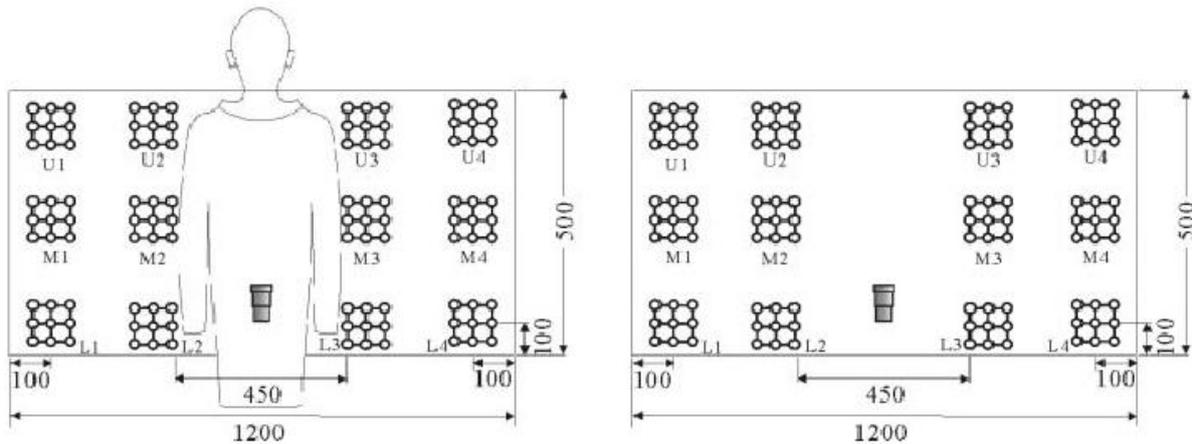


figure 1-6 : Positionnement des points de prélèvements et de la source avec et sans mannequin

Une nouvelle fois, les différences sont significatives entre les deux situations évaluées (avec et sans mannequin ; tableau 1-1) et démontrent toute l'importance d'un essai dans des conditions dégradées lorsque l'on veut définir le niveau de protection apporté par une enceinte ventilée.

tableau 1-1 : Concentration en SF₆ selon la méthode modifiée (Tseng *et al.*, 2007b)

Position	C _{SF6} avec mannequin moyenne (maxi), ppm	C _{SF6} sans mannequin moyenne (maxi), ppm
U1	0,25 (0,37)	0,22 (0,54)
U2	0,01 (0,04)	0,01 (0,02)
U3	0,06 (0,09)	<0,01 (0,01)
U4	0,65 (1,22)	0,12 (0,2)
M1	3,84 (5,33)	0,71 (3,01)
M2	<0,01 (0,01)	<0,01 (0,01)
M3	<0,01 (0,01)	<0,01 (0,01)
M4	5,28 (8,59)	0,76 (2,80)
L1	8,24 (30,20)	0,38 (2,28)
L2	5,33 (11,94)	1,20 (3,11)
L3	1,28 (2,51)	0,64 (2,87)
L4	4,96 (7,70)	0,30 (0,70)

La limite de l'ensemble de ces études est que les résultats ne sont valables que dans le cas d'une pollution gazeuse et n'apportent aucune réponse sur le niveau de confinement et le comportement de ces mêmes installations lorsque le polluant émis est un aérosol particulaire. Il existe peu d'études dans la littérature présentant des travaux similaires en présence d'un aérosol particulaire. On peut citer Prévost *et al.* (1997 ; 1998a et 1998b), qui ont comparé les efficacités de confinement dynamique d'une sorbonne de laboratoire pour trois types d'aérocontaminants : un gaz (hélium),

deux aérosols de diamètres aérodynamiques médians massiques centrés sur 0,15 μm puis 5 μm . Le traceur particulaire employé est de la fluorescéine sodée. Le plus fin des aérosols est généré à l'aide d'un générateur pneumatique alors que le second aérosol est produit par l'intermédiaire d'un générateur à pulvérisation ultrasonore. Les concentrations en fluorescéine sont obtenues par mesures fluorimétriques des filtres de prélèvement conditionnés. La sorbonne test est une hotte basique équipée d'une guillotine de largeur 1 m et de hauteur variable (0 à 1 m) et dont l'extraction d'air est placée en partie haute ; la configuration de sorbonne et des points de prélèvement est présentée sur la figure 1-7, l'extraction de l'air se fait en partie haute. Lors de leurs recherches, ils ont voulu préalablement visualiser les écoulements d'air par le biais d'une sonde d'anémométrie laser placée au niveau de l'ouverture, sans et avec mannequin ; l'étude a d'abord été menée afin d'estimer l'impact de la présence d'un opérateur sur les conditions aérauliques à l'ouverture. La technique de mesure LDA (Laser Doppler Anemometry) a permis d'obtenir l'évolution temporelle et spatiale des composantes des vitesses de l'air dans l'ouverture de la sorbonne en présence ou non d'un mannequin. Cette technique a l'avantage de ne pas être intrusive, et les particules fines émises pour la détection de la diffusion lumineuse sont considérées suffisamment petites pour suivre parfaitement les écoulements d'air. Les composantes de vitesse normales à l'ouverture en présence ou non du mannequin sont présentées sur la figure 1-8.

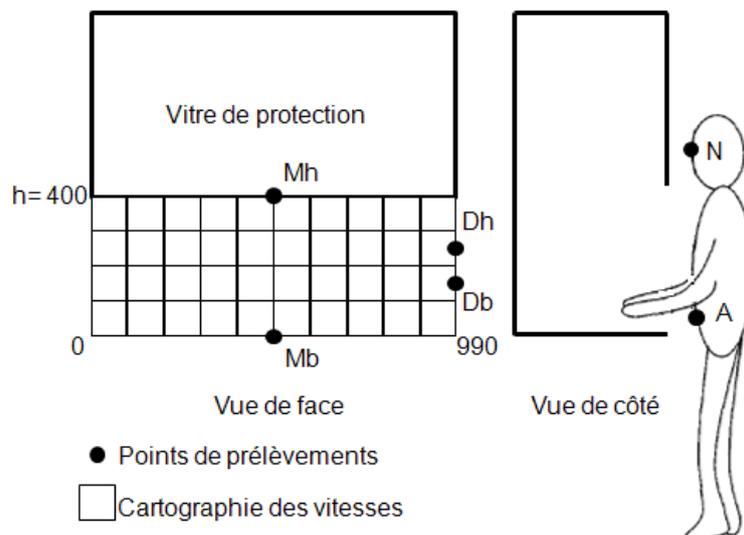


figure 1-7 : Localisation des points de mesure pour chacune des techniques (Prevost *et al.*, 1998a)

Les profils de vitesse tracés sur la figure 1-8 en partie haute sont relativement plats si on excepte les valeurs proches du bord. Par contre, après ajout du mannequin, sur les mêmes profils représentés en partie basse de la figure, on distingue deux changements : une vitesse plus faible dans le sillage du mannequin (position centrée dans la largeur), et a contrario, une vitesse plus élevée sur les bords du mannequin en regard de la situation sans mannequin. Le profil ainsi obtenu forme une sorte de V plus ou moins marqué selon la hauteur du profil dans l'ouverture.

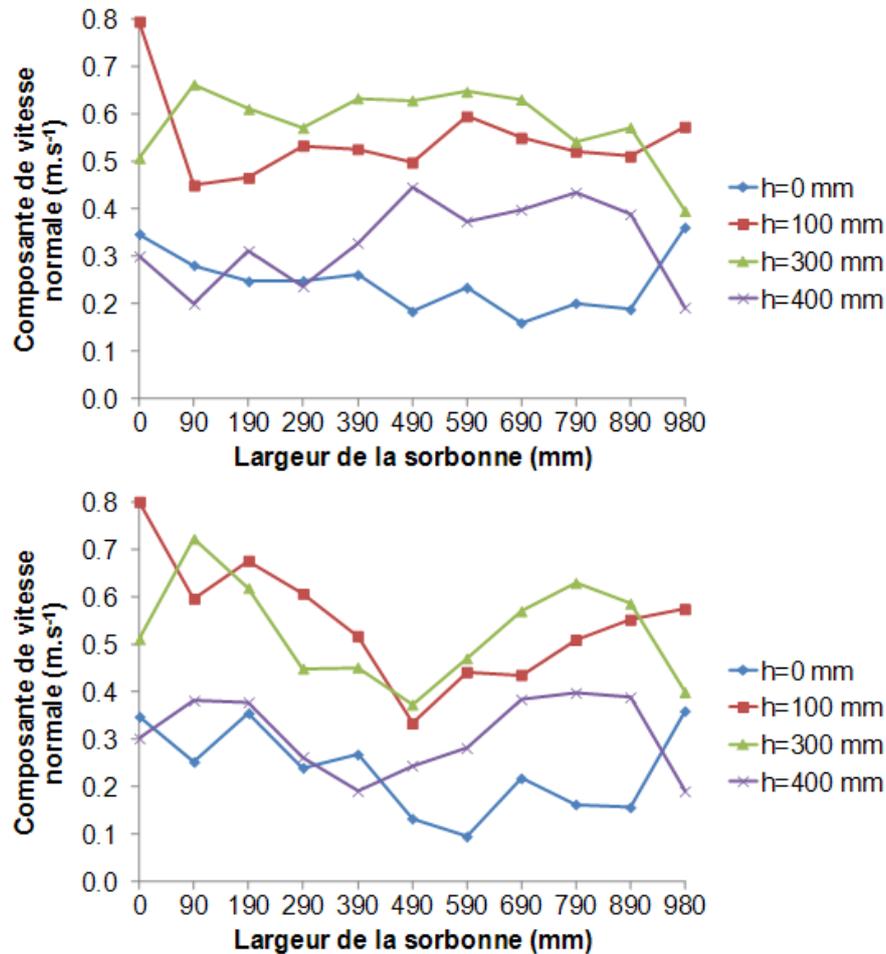


figure 1-8 : Evolution de la vitesse normale en fonction de la position dans l'ouverture ($h=400$ mm et $V=0,5$ m.s⁻¹) ; haut : sans mannequin et bas : avec mannequin (Prévost *et al.*, 1998a)

Il est alors envisageable qu'une telle perturbation du profil de vitesse d'air occasionne des niveaux de confinement différents entre les deux situations. Des mesures de concentrations particulières dans le plan d'ouverture ont été réalisées en différents points pour les deux aérosols tests ($0,15 \mu\text{m}$ et $5 \mu\text{m}$) ; les résultats sont exprimés à l'aide du coefficient de rétrodiffusion noté K_{gaz} , explicité dans l'équation I.3.

$$K_{\text{gaz}} = \frac{c_{\text{gaz}}}{q} \quad \text{équation I.3}$$

Où K_{gaz} est le coefficient de rétrodiffusion exprimé en h.m^{-3} ou s.m^{-3} , c_{gaz} la concentration en polluant (en ppm), q le débit de polluant à la source en $\text{m}^3.\text{s}^{-1}$.

La figure 1-9 et la figure 1-10 permettent d'évaluer l'incidence directe de la présence d'un opérateur à son poste de travail dans une configuration donnée, normalisée ($h = 0,40$ m et $V_{\text{ouverture}} = 0,4$ m.s⁻¹) pour les deux aérosols testés. La rétrodiffusion mesurée sur les bords (points Dh et Db) reste prépondérante quelles que soient les situations évaluées. Pour l'aérosol de $0,15 \mu\text{m}$, l'impact de la présence du mannequin est clairement visible pour le point situé au niveau de la surface de travail

(Mb), pour lequel il y a un facteur 10 entre les coefficients de rétrodiffusion évalués dans chaque situation. Les conséquences sont les mêmes pour l'aérosol de 5 μm , l'augmentation de la rétrodiffusion avec l'ajout du mannequin au niveau de la surface de travail est très importante (facteur 20), mais on détecte également une augmentation sur le point Mh situé en partie supérieure (facteur 5). Pour l'ensemble des résultats, la rétrodiffusion de l'aérosol de 0,15 μm est globalement inférieure à celle de l'aérosol de 5 μm . Les auteurs tentent d'apporter une réponse à cet écart à l'aide des mesures de vitesses locales effectuées préalablement. Ils expliquent que les turbulences associées aux profils de vitesses sont élevées et hétérogènes. Donc, les particules de 5 μm très « inertielles » comparativement aux particules de 0,15 μm , vont profiter des écoulements complexes pour se propager hors de l'enceinte. Ce ne sont là que des hypothèses qui doivent être complétées, d'une part par des mesures de la distribution granulométrique de l'aérosol prélevé, d'autre part par l'évaluation de la cartographie des vitesses d'un plan donné par vélocimétrie laser (PIV par exemple).

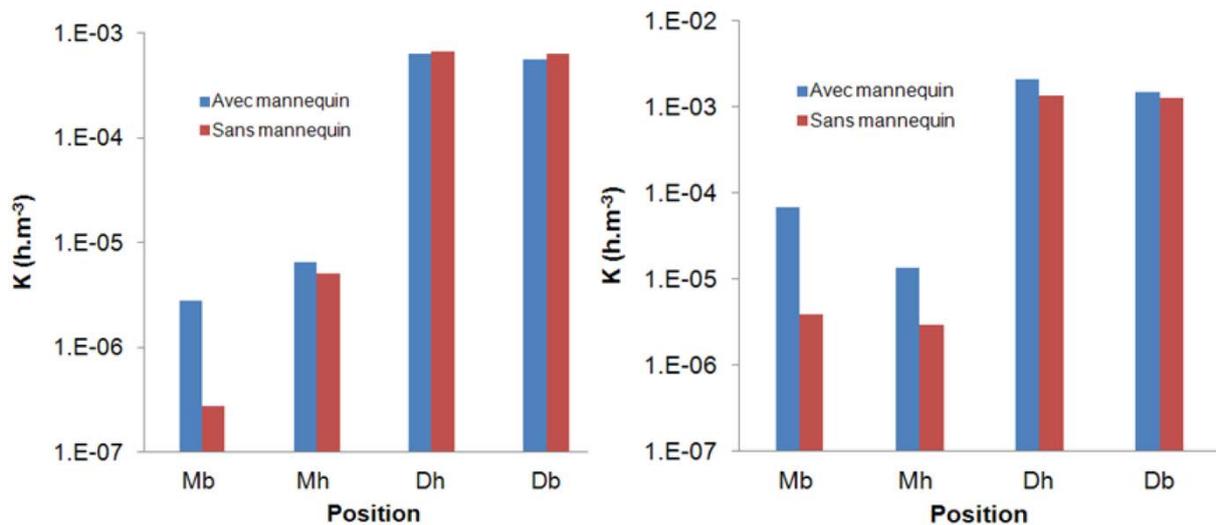


figure 1-9 : Evolution de la rétrodiffusion d'un aérosol de diamètre médian massique de 0,15 μm (gauche) et de 5 μm (droite) (Prévost *et al.*, 1998b)

Prévost *et al.* (1997) ont également comparé le comportement d'un gaz traceur avec celui des deux aérosols testés dans des situations de fonctionnement identiques. Globalement, l'hélium et le traceur particulaire de 0,15 μm ont des comportements proches, alors que les particules de 5 μm présentent une rétrodiffusion plus importante dans les zones proches du plan de travail (points 3 et 4 sur la figure 1-10), ce qui tendrait à dire que, suivant la situation étudiée et la nature du polluant émis, le test au gaz traceur pourrait ne plus être satisfaisant.

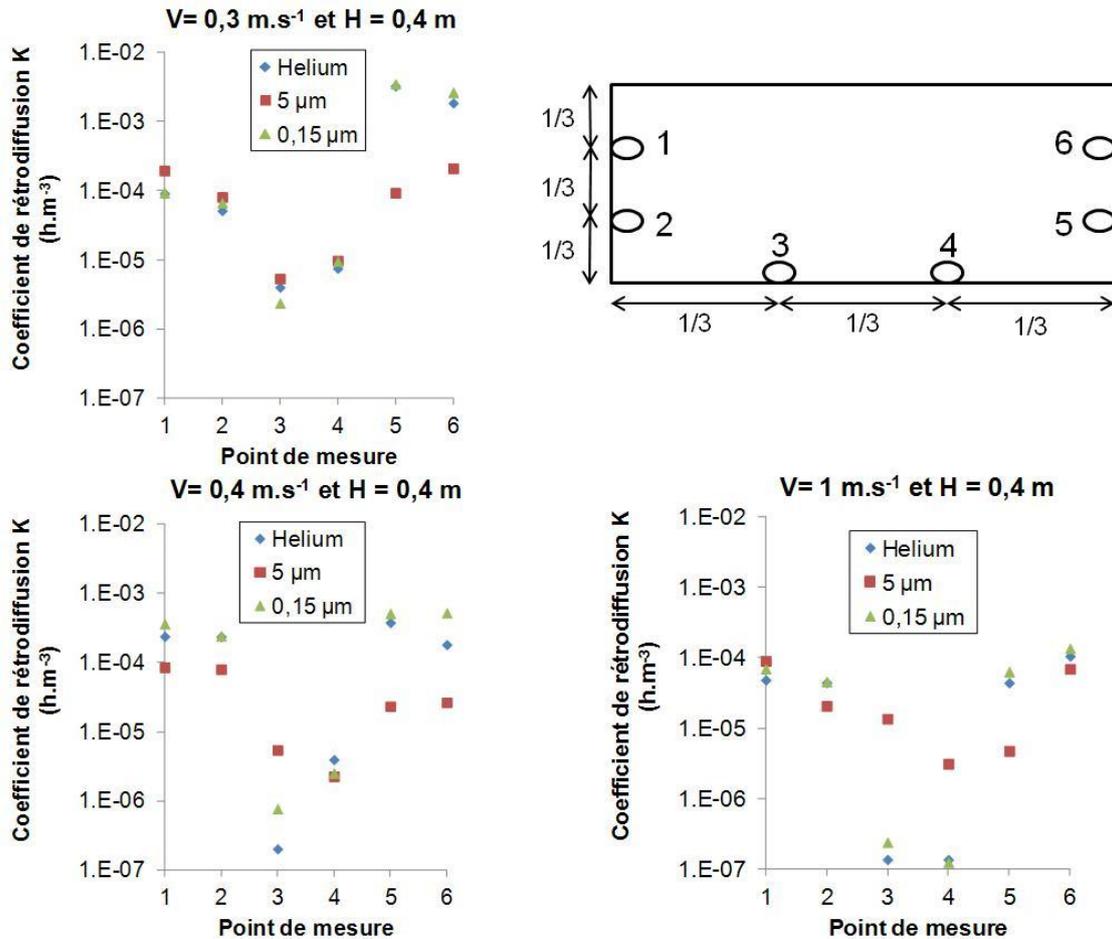


figure 1-10 : Influence de la nature du polluant ainsi que de la vitesse moyenne dans l'ouverture ; répartition des points de mesure dans l'ouverture

Ces différentes études ont démontré l'insuffisance des tests normalisés, utilisés pour valider le bon fonctionnement d'un dispositif de confinement lors de son implantation sur site : ils peuvent ne pas être suffisamment représentatifs des conditions réelles d'utilisation.

Par extension, on peut se demander si les résultats obtenus par traçage gazeux ou à l'aide d'aérosols submicroniques ou micrométriques peuvent être représentatifs du comportement nanoparticulaire. Nous ne disposons que de peu de résultats comme éléments de réponse. Deux études de Tsai *et al.* (2009a et 2009b) se sont intéressées au comportement des nanoparticules lorsqu'elles sont émises dans des enceintes ventilées. Lorsque la taille des particules contenues dans un aérosol est inférieure à un diamètre aérodynamique de l'ordre du micron, les effets d'inertie et de sédimentation deviennent négligeables. Le transport des particules est alors soumis au mouvement du gaz (moyen et turbulent) et à la diffusion brownienne (Hervé-Bazin *et al.*, 2007). Dans ces conditions, le comportement des particules devient comparable à celui d'un gaz passif, si l'on excepte certains phénomènes physiques que sont le dépôt, l'agglomération/coagulation des particules et les interactions électrostatiques. Si l'on considère que les nanoparticules présentent un

taux de dépôt élevé (Wood, 1981 ; Lee et Gieseke , 1994 ; Lai *et al.*, 2001 ; Hervé-Bazin *et al.*, 2007), y compris au sein des filtres très haute efficacité (Mouret, 2008), et que la probabilité d'agglomération est significative (Kim *et al.*, 2003 et 2006 ; Koivisto *et al.*, 2012), on peut alors prédire en théorie que tous les types d'enceinte doivent offrir une meilleure efficacité de confinement pour des aérosols de nanoparticules que pour des polluants de type gazeux et ce, dans des conditions identiques d'émission.

Tsai *et al.*, (2009a et 2009b) présentent des résultats obtenus lors de la manipulation de nanopoudres métalliques à l'intérieur d'enceintes ventilées. La première étude porte sur l'évaluation des performances de trois hottes conventionnelles : une hotte à débit constant, une hotte à débit constant avec un by-pass et une hotte à vitesse constante. Les nanoparticules utilisées se présentent sous la forme de poudre de nanoalumine (Al_2O_3) et nanoargent (Ag). Le scénario est le suivant : l'opérateur transfère à l'intérieur de la hotte les poudres d'un bécher à un autre suivant deux méthodes (figure 1-11), à l'aide d'une spatule (a) ou en transvasant directement un bécher dans l'autre (b). Puis l'opérateur mesure à l'aide d'un FMPS (Fast Mobility Particle Sizer), la distribution granulométrique de l'aérosol ainsi émis dans la gamme granulométrique comprise entre 5,6 nm et 560 nm. Ce système classe la taille des particules en se basant sur leur mobilité électrique. Le point de prélèvement extérieur à l'enceinte est situé dans une zone correspondant à la zone de respiration de l'opérateur (figure 1-12).

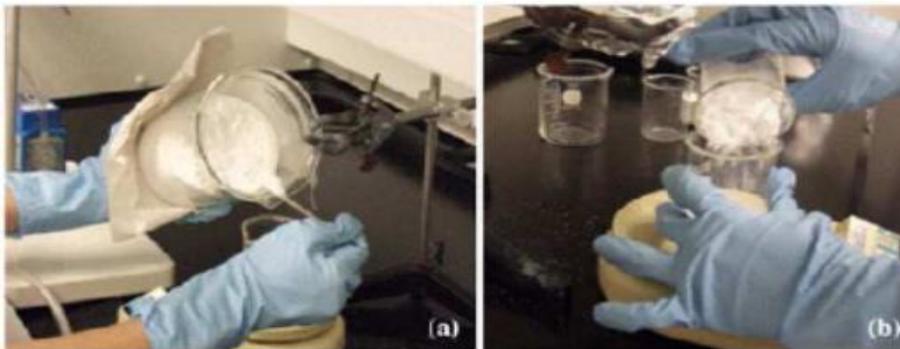


figure 1-11 : Photos des techniques de manipulation- a) transfert b) transvasement (Tsai *et al.*, 2009a)

Les mesures ont été faites pour les trois hottes à des hauteurs d'ouverture variables. La figure 1-13 présente les concentrations en nombre obtenues au niveau de la zone respiratoire de l'opérateur pour une hotte conventionnelle équipée d'un by-pass à deux hauteurs de fonctionnement différentes. On constate que, plus l'ouverture est grande, plus le transfert de particules vers l'extérieur est important, ce qui est principalement dû à une vitesse plus faible au niveau de l'interface ($0,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ au lieu de $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$). Cet exemple est représentatif des autres mesures effectuées, ce qui amène les auteurs à conclure que, suivant les conditions de fonctionnement de la hotte, il peut y avoir des fuites significatives de particules vers la zone respiratoire. Toutefois, il n'est pas possible d'établir avec certitude l'origine des concentrations

mesurées aux différents points de contrôle puisqu'il n'y a aucun contrôle de l'empoussièrément résiduel de la salle d'essai.

Différents paramètres influent sur l'efficacité de confinement tels que le dimensionnement de la hotte, la hauteur d'ouverture, la vitesse d'air à l'ouverture, le type de manipulation (transfert contre versement), le type de mouvements exécutés (lent, rapide), le type et la quantité du matériau utilisé, de même que les conditions environnementales (humidité, courant d'air, etc.). La deuxième étude de Tsai *et al.* intègre, en plus des hottes conventionnelles, une hotte dite à jet push-pull. Les mêmes types de mesures sont effectués, les résultats vont dans le même sens et donc, les conclusions sont similaires.

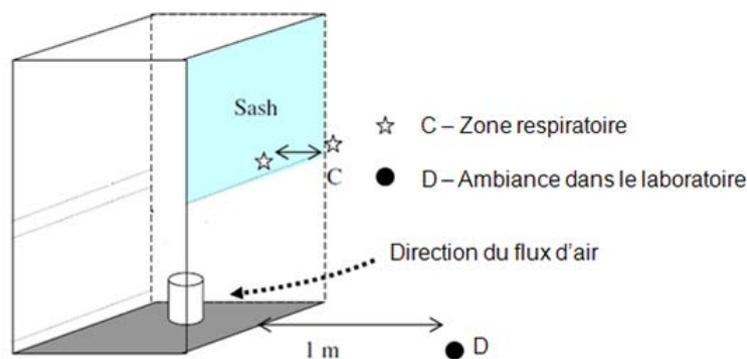


figure 1-12 : Illustration des points de mesure dans et hors de la hotte (Tsai *et al.*, 2009a)

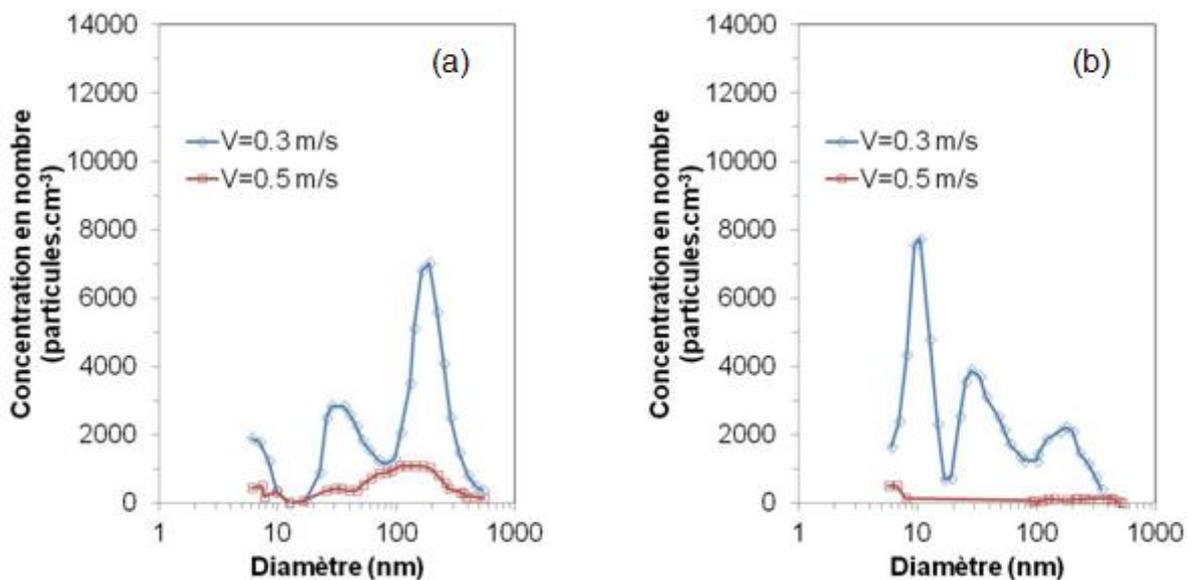


figure 1-13 : Mesure au niveau de la zone respiratoire lors de la manipulation de 100 g de nanoalumine a) transfert b) transvasement

Toutes ces observations ont permis de formuler quelques généralités sur la bonne utilisation des hottes en regard de la manipulation des nanoparticules : les vitesses à l'ouverture se doivent d'être comprises entre $0,4$ et $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, la hauteur d'ouverture doit être la plus réduite possible, il faut placer la hotte dans un environnement le plus stable possible, les opérations de manipulation des nanoparticules doivent se faire

avec un minimum de matière, sans action violente. Malgré tout, peu de résultats complets sur l'efficacité de confinement d'un polluant nanostructuré ont été publiés à ce jour.

Partie expérimentale

Les seuls travaux expérimentaux (Tsai *et al.*, 2009a et 2009b), auxquels nous pouvons nous rattacher, présentent des lacunes importantes dans leurs approches méthodologiques. En effet, les conditions de génération de l'aérosol de nanoparticules, via le transfert manuel de poudre, sont partiellement connues et peu reproductibles. De plus, en l'absence d'une maîtrise ou d'une caractérisation complète de l'aérosol présent dans l'ambiance, l'origine des concentrations mesurées hors de l'enceinte lors du transfert de poudre ne peut être clairement établie.

Dans un premier temps nous allons décrire les démarches de mesure adoptées ainsi que les différents éléments qui composent les bancs d'essai. L'objectif de l'étude étant de développer une ou plusieurs méthodes expérimentales adaptées à la caractérisation de différents dispositifs de confinement lors de la manipulation de nanoparticules.

Chapitre I. Matériels et méthodes

L'évaluation de l'efficacité de confinement d'une enceinte ventilée revient à déterminer la concentration de polluant mesurée (notée C_M) hors de l'enceinte en rapport d'une quantité connue de polluant émise dans cette même enceinte (débit de particules, noté Q_S).

I.1 Principes de mesure et protocole opératoire

1. Approche basée sur la mesure de la distribution granulométrique (banc INRS)

Sachant que les indicateurs d'exposition retenus pour les nanoparticules pourraient reposer sur des mesures de concentration en nombre ou en surface spécifique, et non plus en masse (Ricaud et Witschger, 2008), grandeur classiquement retenue en toxicologie, nous avons opté dans cette partie expérimentale pour une approche en nombre. C'est-à-dire que la grandeur caractéristique est la concentration en nombre de particules par unité de volume.

En premier lieu, il faut s'assurer que la concentration C_M mesurée hors de l'enceinte est représentative de la fuite en polluant et n'est pas, en fait, une mesure de la concentration en polluant résiduelle C_M^A dans la pièce dévouée aux essais. Si on se réfère à une étude de Jaenicke (1993), la distribution granulométrique n_N^0 d'un aérosol atmosphérique peut être définie par la somme de plusieurs fonctions log-normales (équation II.1).

$$n_N^0(\log D_p) = \sum_{i=1}^n \frac{N_i}{(2 \log \sigma_i)^{1/2}} \exp \left(-\frac{(\log D_p - \log \overline{D_{p1}})^2}{2 \log^2 \sigma_i} \right) \quad \text{équation II.1}$$

Où n est le nombre de fonctions log-normales, N_i , D_{pi} et σ_i sont respectivement la concentration en nombre, le diamètre médian et l'écart-type de la $i^{\text{ème}}$ loi log-normale.

Dans le cas de l'aérosol atmosphérique urbain, trois paramètres sont nécessaires à la description de la distribution totale, et leurs valeurs sont présentées dans le tableau 2-1.

tableau 2-1 : Paramètres pour le modèle des distributions des aérosols exprimées en fonction de trois lois log-normales

	Mode I			Mode II			Mode III		
	N (cm^{-3})	D_p (μm)	$\log \sigma$	N (cm^{-3})	D_p (μm)	$\log \sigma$	N (cm^{-3})	D_p (μm)	$\log \sigma$
Aérosol urbain	$9,93 \cdot 10^4$	0,013	0,245	$1,11 \cdot 10^3$	0,014	0,666	$3,64 \cdot 10^4$	0,05	0,337

Les distributions granulométriques obtenues sont tracées sur la figure 2-1. La distribution en nombre est dominée par les particules ultrafines (diamètre inférieur à $0,1 \mu\text{m}$) avec des niveaux de concentration allant jusqu'à $10\,000 \text{ part.cm}^{-3}$. Ces niveaux de concentration sont difficilement atteints lorsque l'on observe les résultats de l'étude de Tsai *et al.* (2009a, dans le Chapitre II de la revue bibliographique), ce qui rend leurs travaux peu exploitables.

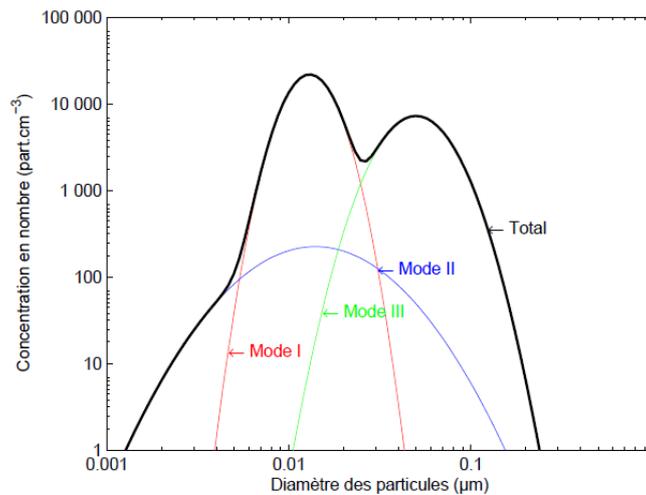


figure 2-1 : Distribution granulométrique d'un aérosol en zone urbaine (Jaenicke, 1993)

Lors de la mise au point, il était alors légitime de se demander si, en extrapolant la valeur du facteur de protection F_{p0} décrit dans la partie revue bibliographique (équation I.2), il était possible de trouver une source générant un aérosol suffisamment concentré pour que le signal mesuré en dehors de l'enceinte soit significatif en rapport de la concentration ambiante. Selon les conditions décrites dans la norme prEN 12469:2000 (débit d'échantillonnage de $100 \text{ dm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ et $6,2 \cdot 10^8$ particules d'iode de potassium libérées), le facteur maximal de protection admis est de $6,2 \cdot 10^6$.

L'extrapolation de l'équation 1.2 devient alors dans le cas d'une mesure nanoparticulaire :

$$F_{PO_{nano}} = \frac{N_{nano}V}{10^4 n_{nano}} \quad \text{équation II.2}$$

Avec les valeurs suivantes : $F_{PO_{nano}} = 6,2 \cdot 10^6$ (sans dimension), V le volume d'échantillonnage de l'ordre de $10 \text{ dm}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ pour les appareils de détection particulaire standards, n_{nano} la concentration particulaire mesurée en dehors de l'enceinte, à laquelle on retire le bruit de fond soit $990\,000 \text{ part} \cdot \text{cm}^{-3}$ (rapport signal sur bruit égal à 100), il reste donc à déterminer N_{nano} la concentration en nombre de particules émises à la source :

$$N_{nano} = \frac{F_{PO_{nano}} 10^4 n_{nano}}{V} = \frac{6,2 \cdot 10^6 10^4 9 \cdot 10^5}{10} = 5,58 \cdot 10^{15} \text{ part} \cdot \text{cm}^{-3} \quad \text{équation II.3}$$

Cette valeur de $5,58 \cdot 10^{15} \text{ part} \cdot \text{cm}^{-3}$ est un maximiseur si l'on respecte les conditions expérimentales du test du KI-Discus ; on peut donc espérer que l'intensité de la source lors de nos essais, n'aura pas à être aussi élevée. Cependant, à la vue de ces calculs, il est nécessaire d'optimiser nos chances de détection. Dès le début, il a ainsi été décidé que les mesures se feraient dans une salle propre dans laquelle l'empoussièrément résiduel peut être contrôlé.

1.1 L'environnement de travail

Le volume utile de la salle propre est de 24 m^3 (4 m de long sur 2 m de large et 3 m de hauteur) (figure 2-2). L'objectif fixé pour la salle propre était d'atteindre la classe ISO 4 (classification définie dans la norme ISO 14644-1). En effet, en adaptant le calcul de la concentration maximale admissible définie par la norme, à des particules de taille nanométrique, on obtiendrait la valeur de $1,45 \cdot 10^8 \text{ part} \cdot \text{m}^{-3}$ soit moins d'une particule par centimètre cube. Par conséquent, la source à utiliser dans ce cas pourra être dix mille fois moins intense que la source à prévoir dans le cas d'une ambiance non contrôlée, soit $5,58 \cdot 10^{11} \text{ part} \cdot \text{cm}^{-3}$. Cette valeur reste relativement élevée mais se rapproche des niveaux de concentration potentiellement atteints par des générateurs de nanoparticules.

Les limites de concentrations particulières atteignables pour chaque classe de diamètre dans cette configuration sont présentées sur le tableau 2-2.

tableau 2-2 : Limites de concentration pour la salle propre de classe ISO 4

Limites de concentration maximales (particules.m ⁻³) pour des particules ayant un diamètre égal ou supérieur aux tailles considérées ci-dessous						
Classification	0,1 µm	0,2 µm	0,3 µm	0,5 µm	1 µm	5 µm
ISO 4	10 000	2 370	1 020	352	-	-

Les mesures d'empoussièremment utiles pour vérifier a priori la qualité de l'installation ont été réalisées à l'aide de deux compteurs optiques, LASAIR PMS 1001 et 1002, permettant de déterminer la concentration en nombre dans la gamme de diamètres aérodynamiques médians massiques allant de 0,1 μm à 5 μm . Les mesures ont été effectuées sous le centre de chaque plenum à une hauteur de 1,5 m, ce qui correspond à une hauteur standard de travail. La durée de prélèvement est de 1 minute, répétée 6 fois pour chaque point évalué. Les moyennes des six concentrations obtenues avec le PMS 1001 au niveau de chaque plenum sont résumées dans le tableau 2-3. Les valeurs seuils établies dans le tableau 2-2 sont respectées et donc la salle propre a un niveau d'empoussièremment résiduel conforme aux exigences établies.

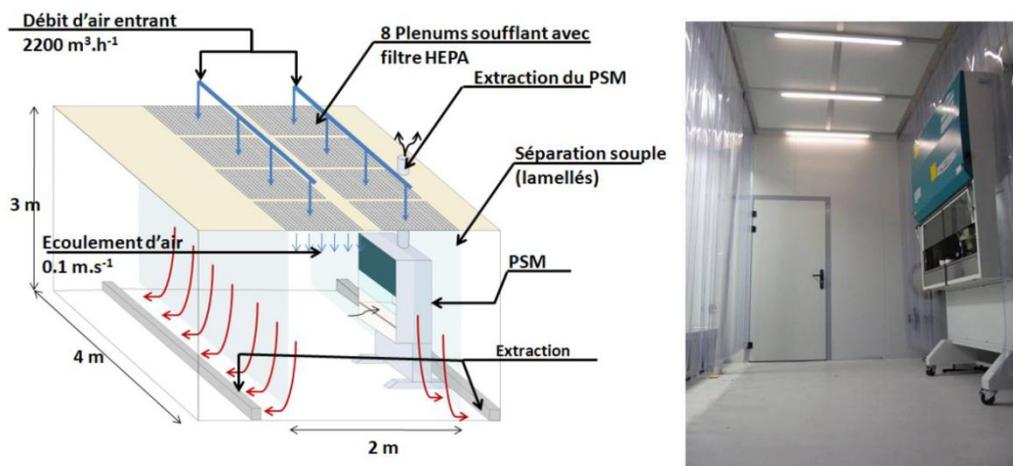


figure 2-2 : Fonctionnement général de la salle propre (gauche), vue de la salle propre (droite)

tableau 2-3 : Concentrations particulaires résiduelles

Plenum soufflant	Concentrations mesurées (particules.m ⁻³) pour des particules ayant un diamètre égal ou supérieur aux tailles considérées ci-dessous					
	0,1 μm	0,2 μm	0,3 μm	0,5 μm	1 μm	5 μm
1	1 177	0	589	0	0	0
2	0	0	0	0	0	0
3	2 354	0	0	0	0	0
4	1 766	1 766	589	0	0	0
5	0	0	0	0	0	0
6	0	0	0	0	0	0
7	0	0	0	0	0	0
8	2 354	1 177	589	0	0	0

Notons que ces classifications ne portent pas sur la gamme nanométrique, mais différentes études ont montré que la pénétration des nanoparticules au travers d'un média filtrant était décroissante avec leur taille (Skaptov *et al.*, 1996 ; Heim *et al.*, 2005 ; Mouret, 2008) ; ainsi, les concentrations résiduelles en nanoparticules diminuent également avec la classe de la salle propre. Dans tous les cas, une mesure du bruit de fond a été réalisée préalablement à chaque mesure à l'aide de

¹l'ensemble SMPS¹ + CNC² (GRIMM). Ces appareils permettent la mesure de la distribution granulométrique d'un aérosol avec un diamètre minimal détectable de quelques nanomètres. Pour l'ensemble des essais, les concentrations résiduelles particulaires dans l'ambiance ont été de l'ordre de 1 part.cm⁻³ et même souvent inférieures, ce qui signifie que tout signal détecté dans la configuration avec émission de nanoparticules dans l'enceinte proviendra directement de cette émission. En d'autres termes, lors de la génération de l'aérosol nanostructuré dans l'enceinte, la proportion de particules potentiellement échappée de l'enceinte ventilée devrait être suffisante pour être significative devant le niveau de concentration résiduelle.

La maîtrise des écoulements d'air dans la salle propre est également une donnée importante. Ainsi qu'il a été explicité précédemment, le fonctionnement aéraulique d'une enceinte ventilée est très sensible aux perturbations extérieures et notamment aux courants d'air. Ce qui explique les limites de vitesse dans la zone d'essai imposées à 0,1 m.s⁻¹ dans la norme prEN 14175-3:2003. La salle propre a été réalisée pour respecter cette règle. Ainsi, différents éléments ont été implantés de manière à homogénéiser le flux d'air au maximum, dans la zone de travail. L'air neuf est insufflé au travers de 8 cassettes filtrantes équipées de filtres H14 qui, outre la filtration de l'air, génèrent un flux d'air homogène descendant qui balaye la pièce avec une vitesse réglable jusqu'à 0,3 m.s⁻¹. Pour les besoins de l'étude, cette vitesse est fixée à 0,1 m.s⁻¹, vitesse suffisamment faible pour ne pas perturber le fonctionnement du dispositif. De plus, celle-ci coïncide avec un taux de renouvellement de 70 volumes par heure, valeur typique d'un petit laboratoire ou d'une unité de production. Le temps de renouvellement d'air dans la salle propre a pu être évalué expérimentalement en utilisant un gaz traceur (SF₆) et un analyseur de vapeur InfraRan (ASHRAE 110 testing). Le résultat obtenu est de 230 s, valeur comparable aux 250 s obtenus théoriquement si l'on suppose que l'écoulement dans la chambre est parfaitement mélangé. L'extraction de l'air se fait en partie basse au travers de deux caissons de reprise équipés de plusieurs grilles réparties dans toute la longueur de la salle. De plus, la zone de travail est délimitée par des lamellés disposés verticalement, ainsi la répartition du soufflage au plafond est homogène et les zones mortes sont exclues. Pour évaluer l'homogénéité du flux d'air insufflé, des mesures de débit (balomètre TSI Accubalance) et de vitesses (anémomètre ultrason Kaijo 3D) ont été réalisées sur chaque plenum soufflant. Les emplacements des points de mesure ainsi que les résultats obtenus sont présentés sur la figure 2-3 et la figure 2-4.

¹SMPS : Scanning Mobility Particle Sizer sélectionne les particules en fonction de leurs diamètres de mobilité électrique

²CNC : Condensation Nuclei Counter compte les particules

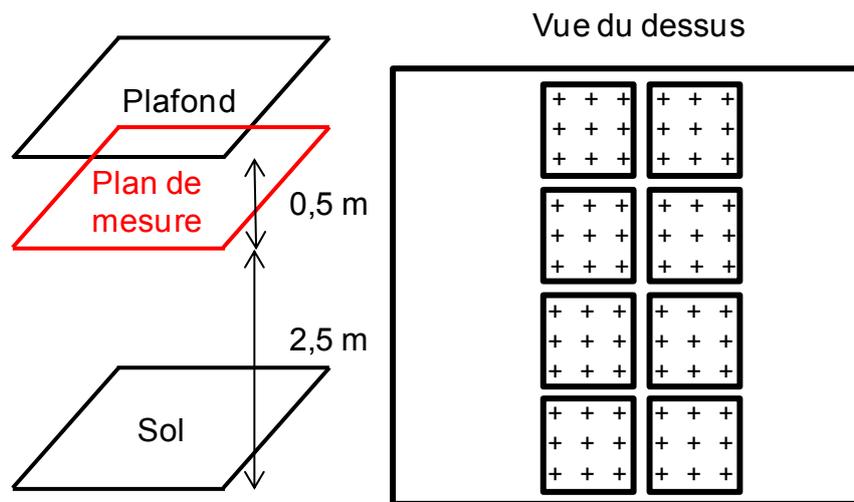


figure 2-3 : Répartition des points de mesure de la vitesse en sortie de diffuseurs

La mesure par balomètre permet d'obtenir le débit total de soufflage sur chaque plenum alors que l'anémomètre ultrason nous renvoie les composantes de la vitesse suivant les trois directions. Le plan de mesure des vitesses est situé 0,5 m en dessous du plafond, et neuf points également répartis sur la surface de chaque plenum sont évalués. La figure 2-4 permet d'apprécier la répartition du flux d'air dans la salle propre. Les débits sont relativement bien répartis sur l'ensemble des plenums, avec une fluctuation de $\pm 3\%$ autour de la valeur moyenne de $278 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. Seule la vitesse normale au plafond est représentée car elle est prépondérante devant les deux autres composantes. On constate une fluctuation de l'ordre de 10% autour de la valeur moyenne de $0,11 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pour l'ensemble des plenums. Ces mesures ont démontré que les écoulements d'air étaient stables dans la salle propre et que les fluctuations de vitesses devraient être suffisamment faibles pour n'avoir aucun impact sur le fonctionnement aéraulique du dispositif étudié.

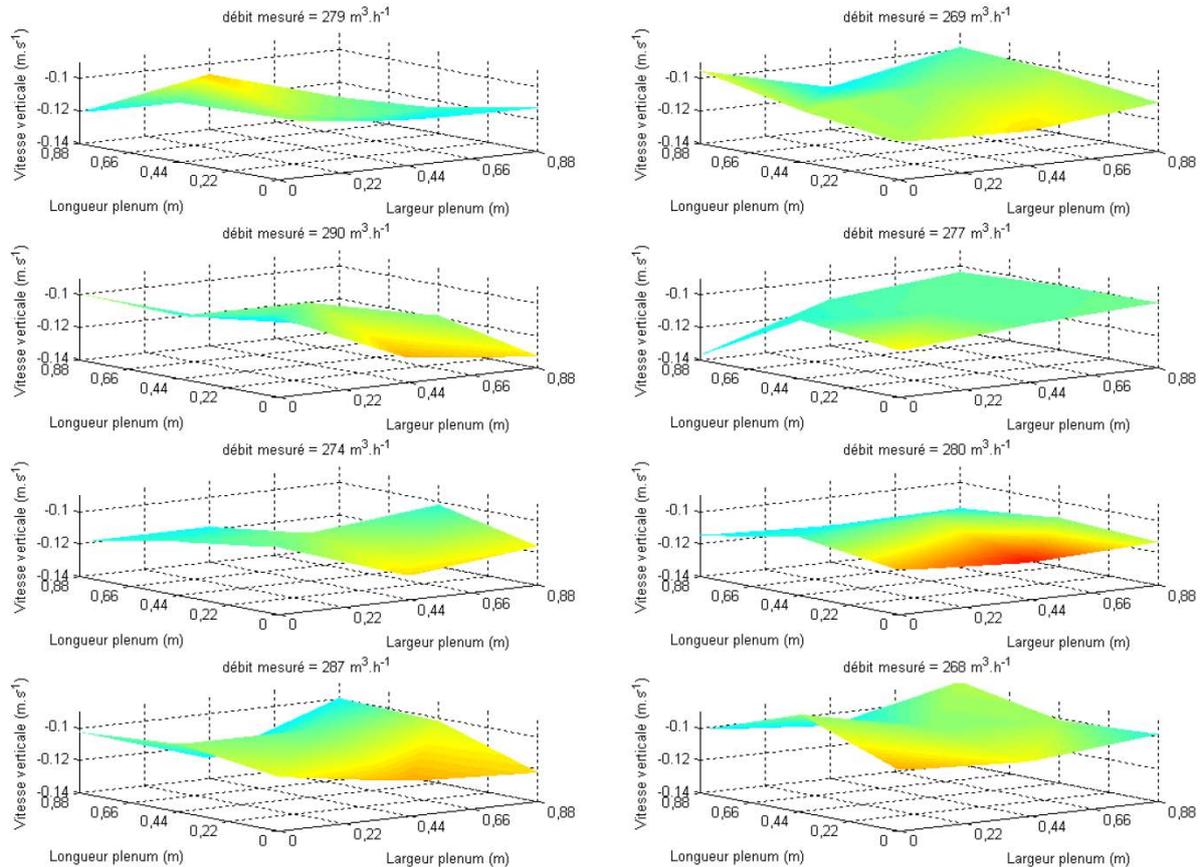


figure 2-4 : Valeurs du débit et des vitesses verticales pour chaque plenum soufflant

Enfin, pour éviter la contamination provenant de l'extérieur de la salle propre, celle-ci est maintenue en surpression d'environ 10 Pa, et l'accès se fait par l'intermédiaire d'un sas en dépression (environ 50 Pa).

2. Approche basée sur la détection de la fluorescence de l'échantillon (banc IRSN)

En parallèle à l'approche expérimentale menée à l'INRS (partie précédente), nous avons envisagé de développer une méthode de mesure spécifique des nanoparticules par le biais d'un marqueur tel que la fluorescéine sodée, communément appelé uranine. Cette technique permet ainsi de s'affranchir d'un contrôle de l'empoussièrement résiduel car, d'une part cet élément n'est pas naturellement présent dans l'air, et par ailleurs, sa détection est rendue spécifique du fait des propriétés de fluorescence de l'échantillon prélevé. Il est ainsi possible de calculer la concentration massique de fluorescéine prélevée à partir du niveau de fluorescence mesurée. Sur des sites industriels ou en laboratoire, l'efficacité des dispositifs de confinement pour des aérocontaminants de nature la plus souvent particulière est quantifiable à l'aide de cette technique ; elle peut être mise en œuvre en présence d'un recyclage de l'air dans l'enceinte (limite d'utilisation du gaz traceur). Comme dans la partie précédente, nous avons souhaité confronter les

résultats obtenus pour l'aérosol de fluorescéine avec les résultats observés pour un gaz traceur émis dans les mêmes conditions.

I.2 Les dispositifs étudiés

1. Banc INRS : un Poste de Sécurité Microbiologique

Les essais sont menés sur un Poste de Sécurité Microbiologique de type II dont voici le principe de fonctionnement pour rappel : l'enceinte est placée en dépression, l'air étant aspiré au travers de fentes placées au niveau du plan de travail. Ce mécanisme de barrière de confinement dynamique est commun à tous les types d'enceintes ventilées. La spécificité aéraulique d'un PSM de type II est la suivante : seule une partie de l'air aspiré en partie basse est totalement extraite (ici de l'ordre de 30%). l'autre partie (donc environ 70%) est réintroduite, après filtration, au travers de la partie supérieure de l'espace de travail, générant de cette façon, un flux unidirectionnel descendant qui offre, en plus d'une protection de l'opérateur, une protection du produit manipulé (figure 1-1). Le comportement aéraulique du PSM a été évalué lors d'une étude précédente menée par l'INRS (Bonthoux, 2008) utilisant différentes techniques de mesure telles que l'anémométrie omnidirectionnelle (DANTEC Vivo Draught SN 126 and 127) et l'anémométrie directionnelle Ahlborn FVA605-TA1 techniques permettant d'évaluer les profils de vitesse dans et autour du système. La mise en œuvre d'un diaphragme, d'un tube de Pitot (micromanomètre DPCAL 8710) et de la technique de traçage gazeux, a permis d'obtenir les valeurs des débits d'air. Ses principales dimensions ainsi que les paramètres aérauliques sont résumés dans le tableau 2-4.

tableau 2-4 : Dimensions, vitesses et débits de référence du PSM

Dimensions utiles (mm)			Hauteur de l'ouverture (mm)	Débit aspiré ($\text{m}^3.\text{h}^{-1}$)	Débit réintroduit ($\text{m}^3.\text{h}^{-1}$)	Vitesse moyenne descendante ($\text{m}.\text{s}^{-1}$)	Vitesse moyenne à l'ouverture ($\text{m}.\text{s}^{-1}$)
Largeur	Hauteur	Profondeur					
1190	660	580	200	320	1017	0,405	0,372

L'enceinte est équipée de deux filtres très haute efficacité classés H14 selon la norme EN 1822-1, le premier des deux étant placé sous l'espace de travail et le second au-dessus de la zone de travail.

2. Banc IRSN : une sorbonne « maison »

Les essais sont menés sur une sorbonne traditionnelle dont voici le principe de fonctionnement pour rappel : l'enceinte est placée en dépression, l'air étant aspiré au travers de la partie haute (figure 2-5). La sorbonne est facilement modifiable, la hauteur d'ouverture pouvant être ajustée à différents niveaux. Pour les besoins de l'étude, nous l'avons fait varier entre 0,2 m et 0,6 m. Le débit d'aspiration peut également être modifié ; compte tenu de ces différents réglages géométriques et

aérauliques de la sorbonne, les valeurs des vitesses d'air dans l'ouverture ont varié entre $0,2 \text{ m.s}^{-1}$ et 1 m.s^{-1} .

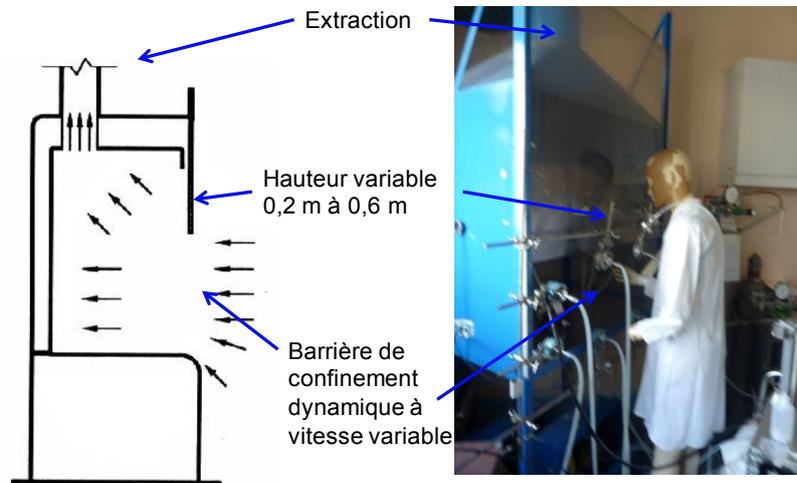


figure 2-5 : Principe de fonctionnement de la sorbonne étudiée

I.3 La génération des nanoparticules

Deux techniques différentes ont été adoptées pour la génération d'un aérosol de nanoparticules test, soit par atomisation d'une solution saline, soit par électrocorrosion.

1. La nébulisation

Nous avons d'abord choisi d'atomiser un aérosol de particules salines à l'aide d'un nébuliseur. Ce choix a principalement été motivé par le principe de prévention. En effet, le fait que les connaissances toxicologiques soient parcellaires et que nous n'ayons pas d'informations concrètes et fiables sur les niveaux de confinement atteints par les dispositifs de confinement aéraulique, nous amène à faire preuve de prudence. Sur la base de ces considérations, les aérosols salins ainsi produits apparaissent comme une solution raisonnable puisque ce sont, compte tenu de leur nature chimique, des éléments qui présentent généralement une toxicité aiguë très modérée. C'est donc le cas des deux substances choisies pour nos tests, à savoir le chlorure de sodium (NaCl) et la fluorescéine sodée ($\text{C}_{20}\text{H}_{10}\text{Na}_2\text{O}_5$). Le nébuliseur produit un aérosol ultrafin en atomisant une solution saline liquide (Ulevicius *et al.*, 1997 ; Wlodzimierz *et al.*, 1990). Lors de cette étude, nous avons utilisé un générateur Palas AGF 2.0, alimenté en air comprimé et en solution liquide saline. Lorsque l'air d'alimentation traverse la buse d'atomisation (figure 2-6), pièce de très faible section, la vitesse de l'air augmente et crée une forte dépression dans le même temps. Ce phénomène de dépression permet l'aspiration de la solution jusque dans la buse (par effet Venturi). Ainsi, nous formons un mélange d'air, de gouttelettes et de particules. En sortie de buse, l'aérosol humide passe au travers d'un cyclone, ce qui a pour conséquence d'éliminer les gouttelettes qui vont retomber

par gravité dans le récipient contenant la solution saline. L'aérosol ainsi généré contient uniquement des particules salines sèches.

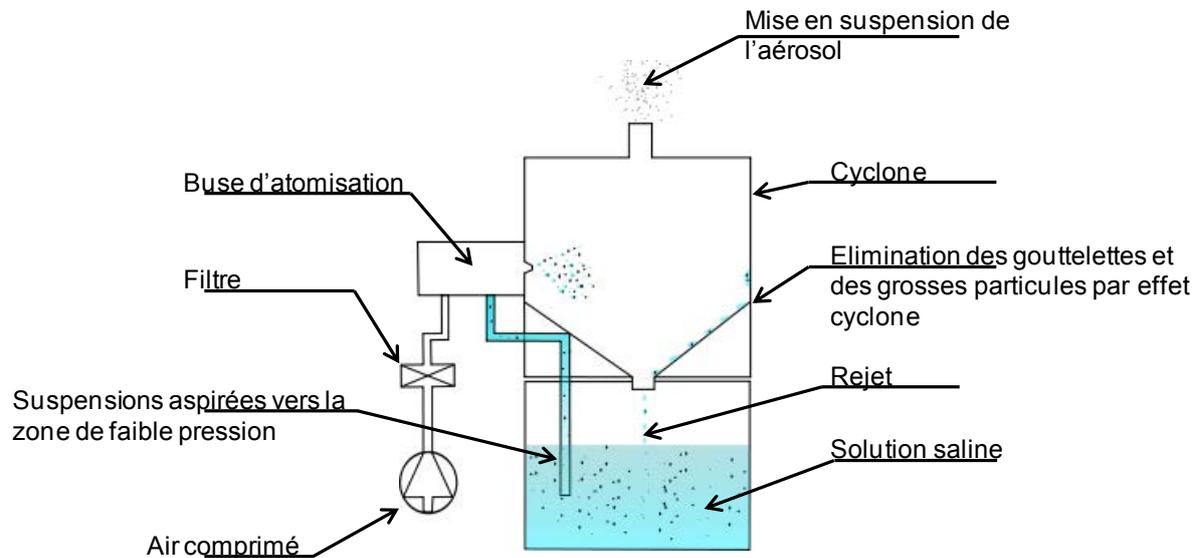


figure 2-6 : Principe de génération par nébulisation

Les distributions granulométriques obtenues vont dépendre de différents paramètres : la pression de l'air en entrée, la concentration massique de la solution liquide de base, et aussi la nature chimique de l'élément mis en suspension. Les distributions granulométriques obtenues pour une solution de NaCl concentrée à 0,1% en masse et pour différents débits d'émission sont présentées sur la figure 2-7.

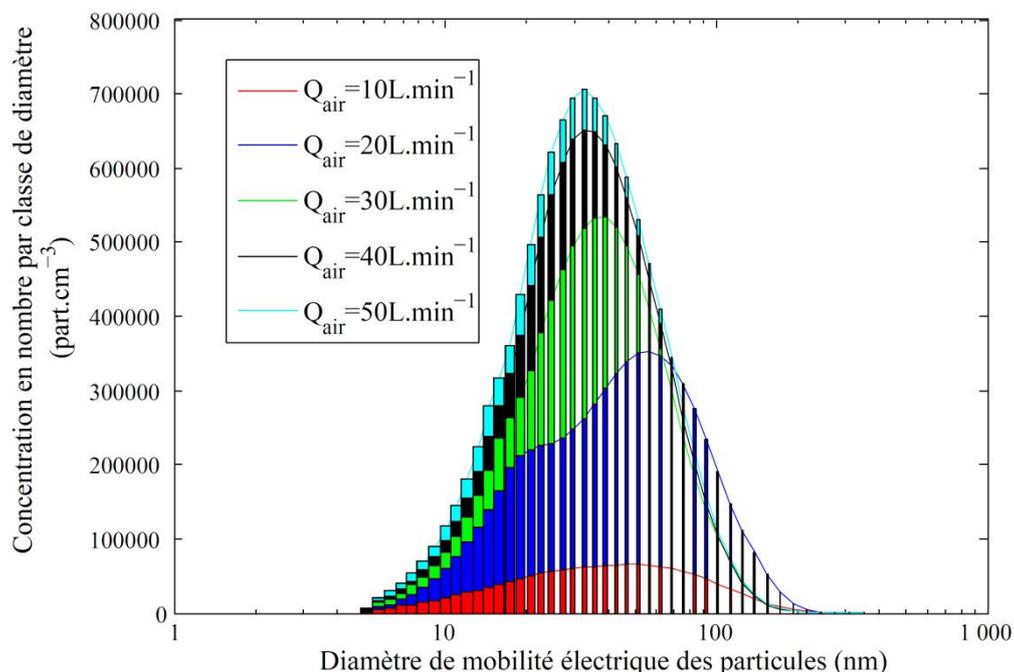


figure 2-7 : Distribution granulométrique obtenue pour différents débits d'air et pour une solution de NaCl concentrée à 0,1% en masse

L'ensemble des distributions granulométriques obtenues seront présentées ultérieurement après avoir détaillé le fonctionnement des appareils de détection particulaire.

L'électro-corrosion

Le générateur PALAS GFG-1000 produit un aérosol ultrafin en générant une décharge électrique entre deux électrodes. Ce principe de production a été introduit par Schwyn *et al.* (1988), puis repris dans de nombreuses études (Roth *et al.*, 1998 ; Evans *et al.*, 2003a et 2003b ; Horvath et Gangl, 2003 ; Kim et Chang, 2005 ; Tabrizi *et al.*, 2009) dans lesquelles cette technique est présentée comme étant simple, reproductible et stable temporellement. Le schéma de principe est décrit sur la figure 2-8.

L'espace entre les deux électrodes de diamètre 6 mm est d'environ 2 mm. Elles se trouvent dans une chambre en polyamide de 19 cm³, matériau remis en cause par Roth *et al.* (2004) car susceptible d'émettre des composés volatils pouvant contaminer jusqu'à hauteur de 25 % en masse, l'aérosol généré. Cependant, lors des travaux de thèse de Bau (2008), des analyses chimiques réalisées sur les aérosols générés n'ont détecté aucune trace de cette pollution. Les électrodes se consommant durant la génération, un système automatique de pilotage maintient l'espace constant entre les électrodes, paramètre influant à la fois sur le débit massique et également sur la distribution granulométrique de l'aérosol.

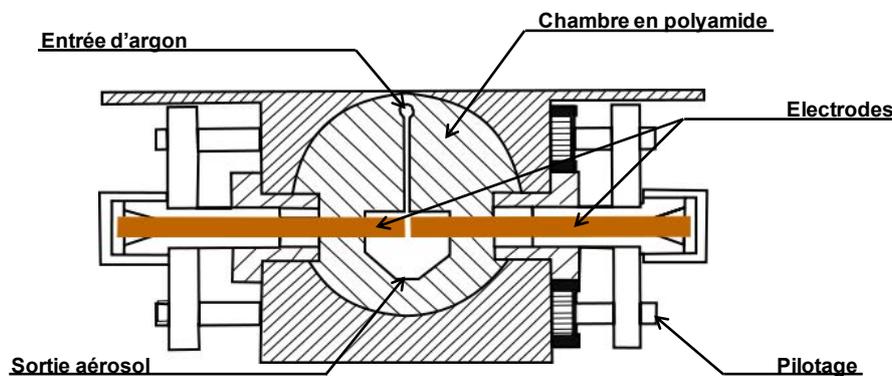


figure 2-8 : Schéma de la chambre de génération du PALAS GFG-1000

La décharge d'un condensateur (tension de claquage de 2 kV) produit l'étincelle nécessaire à l'arrachage des particules. Du fait de cette décharge électrique importante, la température va s'élever rapidement à environ 10 000 K entre les deux électrodes (Reinman et Akram, 1997). Cette élévation locale de la température évapore une fraction des électrodes, et suite à des processus de condensation et de nucléation des particules primaires sont formées (Borra, 2006). En fonction de la concentration, les particules primaires vont s'agglomérer et cette agglomération peut être partiellement contrôlée par dilution de l'aérosol avec de l'air filtré.

Les électrodes sont protégées de l'oxydation par l'apport d'un courant d'argon (gaz inerte). Les débits d'air et d'argon sont des paramètres importants à contrôler pour s'assurer de la stabilité et de la reproductibilité de la génération. Le réglage de ces deux grandeurs se fait via deux manomètres situés en façade de l'appareil (figure 2-9).

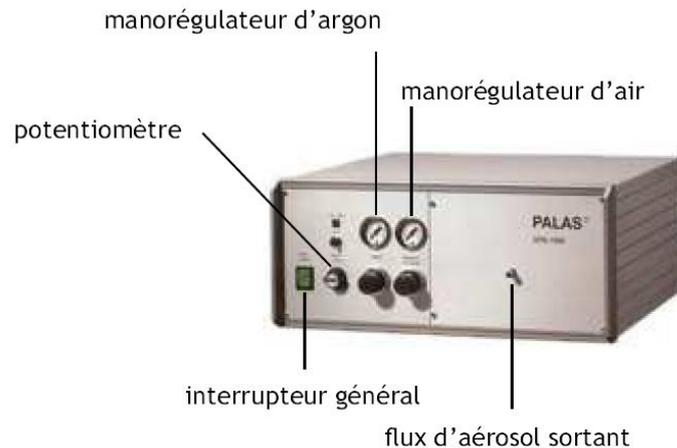


figure 2-9 : Façade du PALAS GFG-1000

Enfin, la fréquence d'étincelle f (Hz) est ajustée par un potentiomètre, également placé en façade du générateur, gradué entre 0 et 1000. Le réglage ne se fait pas directement sur f mais sur ω , défini dans la documentation par :

$$f = 0,3 \omega \quad \text{équation II.4}$$

Pour simplifier, par la suite quand nous parlerons de fréquence d'étincelle, il s'agira de ω .

I.4 Les appareils de détection particulaire

1. Mesure de la distribution granulométrique

L'appareil de mesure que nous avons retenu pour cette étude est le SMPS pour Size Mobility Particle Sizer. Cet instrument est composé d'un Analyseur Différentiel de Mobilité Electrique (ADME ou Differential Mobility Analyser DMA) associé à un Compteur à Noyau de Condensation (CNC ou Condensation Particle Counter CPC) ; il est souvent présenté comme l'instrument de référence (Flagan, 2001 ; Cheng, 2001 ; Asbach *et al.*, 2009) lors de la caractérisation d'aérosol nanométrique. Le critère de sélection des particules est la mobilité électrique, (Le Bihan, 2006 ; ADEME, 2007), cette grandeur indique la capacité d'une particule à se déplacer sous l'effet d'un champ électrique, qui est égal au produit de la charge par la mobilité dynamique B (équation II.5).

$$Zp = n_e e \frac{C_C}{3\pi\mu_g d_p} \quad \text{équation II.5}$$

Avec n_e le nombre de charges élémentaires, $e = 1,6 \cdot 10^{-19}$ C, μ_g est la viscosité dynamique du gaz, d_p le diamètre médian des particules et C_C est le nombre de Cunningham lui-même dépendant du nombre de Knudsen :

$$C_C = 1 + K_n(A + B \cdot e^{-C/K_n}) \quad \text{équation II.6}$$

Et

$$K_n = \frac{2\lambda}{d_p} \quad \text{équation II.7}$$

Avec $\lambda = \lambda_r \frac{101,3}{P} \frac{T}{293,15} \left(1 + \frac{110}{293,5} + \frac{110}{T}\right)$ où $\lambda_r = 66,5$ nm est le libre parcours moyen de l'air aux CNTP (P en kPa et T en Kelvin), A, B et C des constantes.

1. La sélection

La sélection se déroule en trois grandes étapes.

1- La présélection : la totalité de l'aérosol prélevé passe au travers d'un étage d'impacteur (figure 2-10) constitué d'un ajutage dirigeant un jet d'air contre une surface solide. Les particules ayant un diamètre supérieur à un certain diamètre de coupure, défini par le nombre de Stokes (équation II.8) vont s'impacter sur cette surface, avec une efficacité de collecte de l'ordre de 50 %. Le nombre de Stokes est le rapport entre le temps de relaxation d'une particule et le temps de réponse caractéristique du fluide pour éviter l'obstacle.

$$S_{tk} = \frac{\tau_p U_0}{R} \quad \text{équation II.8}$$

Où U_0 est la vitesse de l'air, τ_p le temps de relaxation des particules et R le rayon de passage.

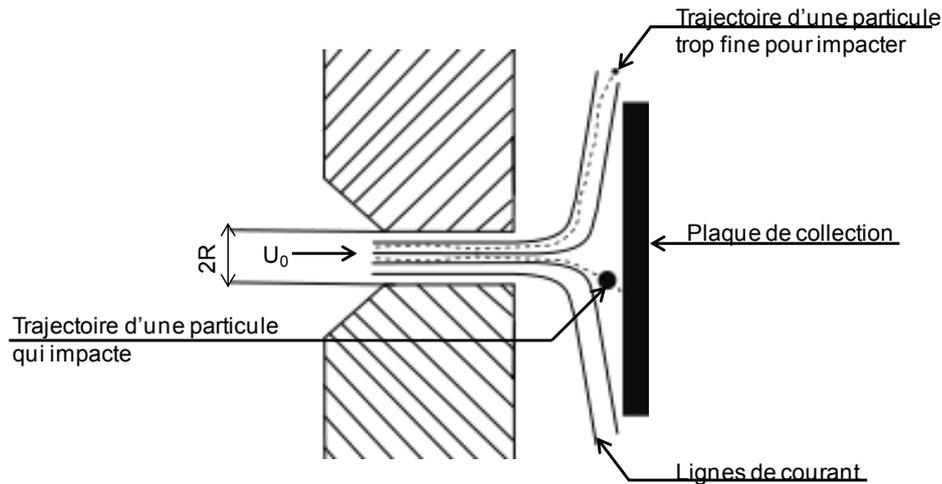


figure 2-10 : Schéma d'un impacteur

2- La « neutralisation » des particules : lors de l'écoulement d'un aérosol au voisinage d'une source constante d'ions bipolaires, comme une source radioactive d'Américium 241 (^{241}Am), sa charge électrique va atteindre un état stationnaire, dénommé « équilibre de Boltzmann ». La relation empirique de Wiedensohler (1988) permet d'établir la probabilité g qu'une particule de diamètre d_p porte N charges. La distribution des charges électriques est alors la suivante :

$$g(N) = 10^{b(N)} \quad \text{équation II.9}$$

Avec

$$b(N) = \sum_{i=0}^5 [a_i(N)(\log d_p)^i] \quad \text{équation II.10}$$

Wiedensohler (1988) propose une approximation qui permet un calcul rapide de cet état de charge. Les coefficients $a_i(N)$ obtenus sont présentés dans le tableau 2-5.

tableau 2-5 : Coefficients $a_i(N)$

$a_i(N)$	N (nombre de charge)				
	-2	-1	0	1	2
a_0	-26,3328	-2,3197	-0,0003	-2,3484	-44,4756
a_1	35,9044	0,6175	-0,1014	0,6044	79,3772
a_2	-21,4608	0,6201	0,3073	0,48	-62,89
a_3	7,0867	-0,1105	-0,3372	0,0013	26,4492
a_4	-1,3088	-0,126	0,1023	-0,1553	-5,748
a_5	0,1051	0,0297	-0,0105	0,032	0,5049

Le modèle n'est valable que pour une gamme de diamètre de mobilité électrique établie : dans le cas où $N = -1, 1$ et 0 cet intervalle est de $[1 \text{ nm} ; 1000 \text{ nm}]$ et dans le cas où $N = -2$ et $+2$ cet intervalle est de $[20 \text{ nm} ; 1000 \text{ nm}]$. Les particules de moins de 20 nm portent moins d'une charge (positive ou négative) alors que les particules de diamètre supérieur ont une probabilité non nulle de porter au moins deux charges (figure 2-11).

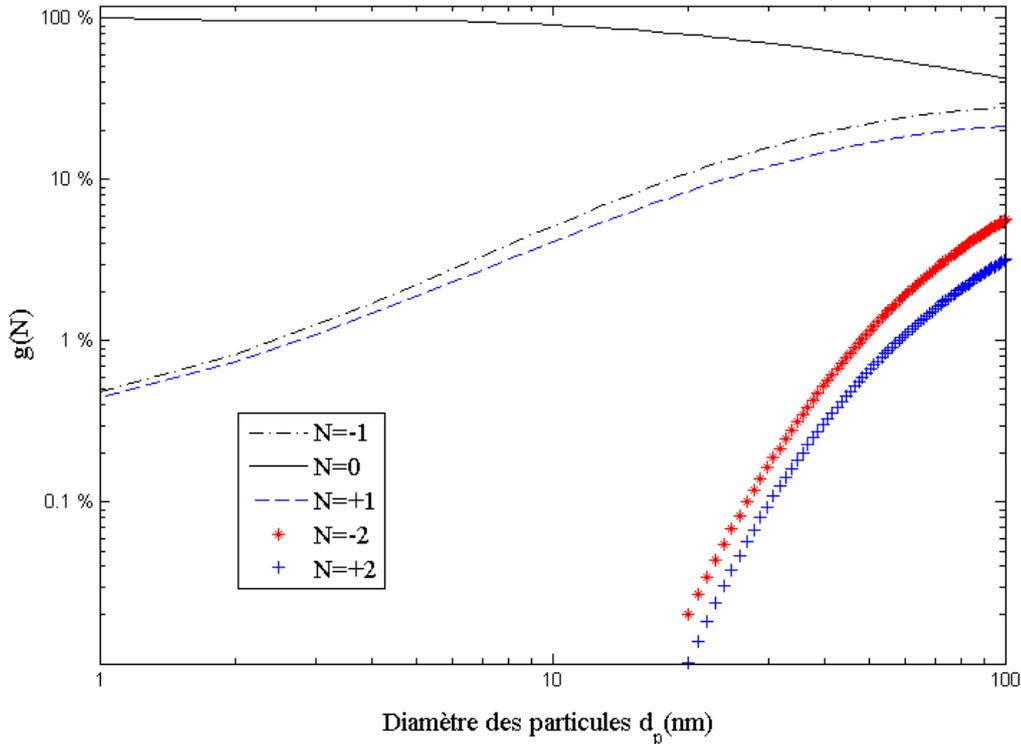


figure 2-11 : Répartition des charges en fonction de la taille des particules après passage au voisinage d'une source d'ions bipolaires

En observant la figure ci-dessus, trois constats s'imposent : l'augmentation de la taille des particules coïncide également avec une augmentation du nombre de charges portées (toutes charges confondues) ; néanmoins, l'aérosol reste globalement neutre puisque les charges positives et négatives augmentent de manière quasi identique, et c'est pourquoi, on parle abusivement de neutraliseur lorsque l'on évoque cette partie du DMA. Il est toutefois notable que la proportion de charges négatives est légèrement supérieure à celles positives, ce qui rend l'état de charge global de l'aérosol négatif. Mouret (2008) a pu mettre en évidence expérimentalement ce phénomène à l'aide d'un électromètre placé en sortie de source.

3- La sélection des particules : les particules chargées possèdent une mobilité électrique définie par l'équation II.5 et notée Zp . La trajectoire d'une particule se déplaçant au voisinage d'un champ électrique suffisamment intense pour rendre les forces de gravité, d'inertie et la diffusion brownienne, négligeables, peut être

déterminée à l'aide de la vitesse de dérive due au champ électrique \vec{E} et à partir de la vitesse du fluide porteur $\vec{V}_{balayage}$ (équation II.11).

$$\vec{V}_p = \vec{V}_{balayage} + Zp\vec{E} \quad \text{équation II.11}$$

En maîtrisant le débit d'air de balayage $\vec{V}_{balayage}$ et l'intensité du champ électrique \vec{E} , il est possible de contrôler la trajectoire de la particule. Ainsi, le DMA est constitué de deux électrodes concentriques schématisées sur la figure 2-12 et c'est la variation de potentiel entre ces deux électrodes qui va permettre de sélectionner les particules, ayant la bonne mobilité électrique au travers d'une fente très étroite et par conséquent, le diamètre de mobilité électrique souhaité. La mobilité électrique d'une particule est liée au débit volumique opératoire de balayage $Q_{balayage}$, à la différence de potentiel U ainsi qu'aux dimensions de l'enceinte de mesure (Longueur de la colonne L_{DMA}), rayon intérieur (r_1) et rayon extérieur (r_2) selon Fuchs (1964) :

$$Zp = \frac{Q_{balayage} \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)}{2\pi UL_{DMA}} \quad \text{équation II.12}$$

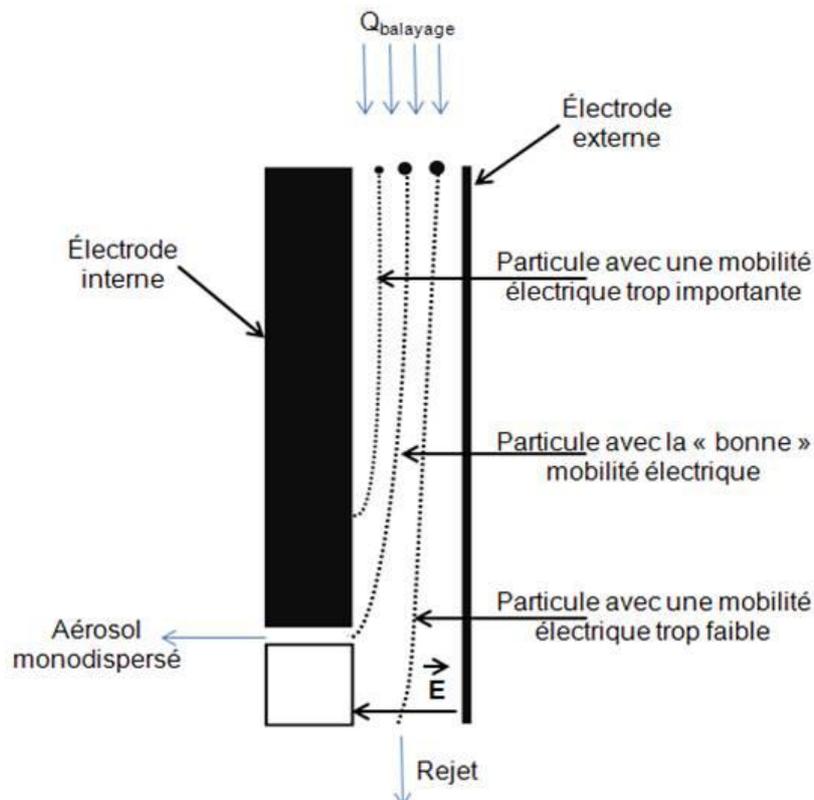


figure 2-12 : Schéma de la sélection de l'aérosol monodispersé

Sur la figure 2-13 sont représentées les associations théoriques tension / diamètre de particules sélectionnées pour deux niveaux de charges ($|N|=1$ et $|N|=2$). Dans la pratique, nous avons la possibilité de sélectionner 44 classes de diamètre réparties

entre 11,1 nm et 1083 nm ou 5,5 nm et 350 nm suivant que l'on utilise respectivement la grande ou la moyenne colonne du DMA.

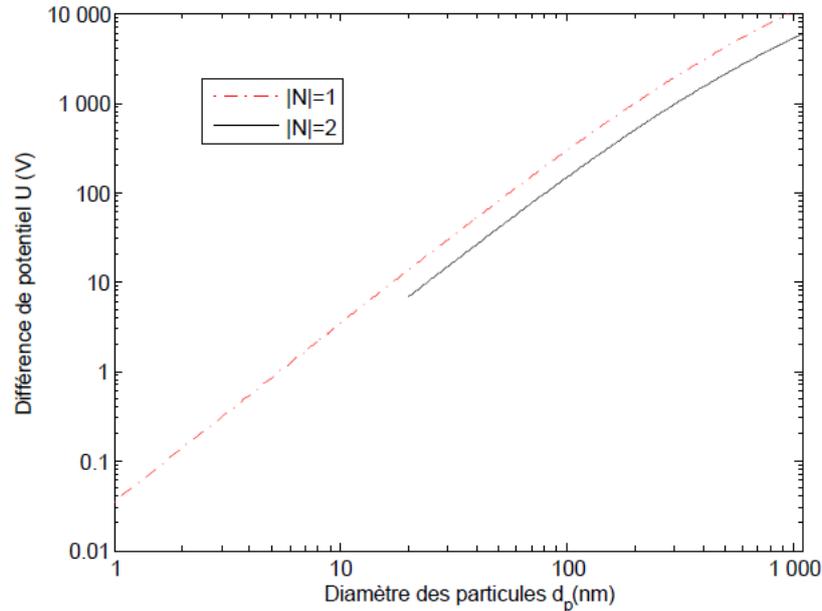


figure 2-13 : Tension à appliquer entre les électrodes de la colonne moyenne du DMA en fonction du diamètre de la particule sélectionnée et du nombre de charges portées ($N=1$ ou $N=2$)

Seules les particules chargées négativement vont être prélevées en sortie du DMA, c'est-à-dire, dans notre cas, des particules portant les charges $N = -1$ et $N = -2$; pour les particules de diamètre supérieur à 20 nm, la fraction de particules portant $N = -3$ est négligeable. Il est alors possible que le DMA ait sélectionné des particules de diamètres différents mais ayant la même mobilité électrique ; il faut alors déterminer les concentrations en particules portant N charges. Bau (2008) a mis en évidence ce problème et propose la relation suivante pour déterminer le nombre de particules portant N charges élémentaires en sortie du DMA :

$$\left(\begin{array}{c} \text{Concentration en} \\ \text{nombre de} \\ \text{particules portant} \\ N \text{ charges} \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{Concentration} \\ \text{en nombre de} \\ \text{particules} \\ \text{initiale} \end{array} \right) \cdot \left(\begin{array}{c} \text{Probabilit} \\ \text{que la particule} \\ \text{porte } N \text{ charges} \end{array} \right) \cdot \left(\begin{array}{c} \text{Probabilit} \\ \text{de collecte} \\ \text{de la particule} \end{array} \right)$$

équation II.13

Soit :

$$C_N(d_p(N), Z_p) = C_{N0}(d_p(N), Z_p) g(N) \eta_{DMA}(d_p(N), Z_p) \quad \text{équation II.14}$$

Où $\eta_{DMA}(d_p(N), Z_p)$ est la fonction de probabilité d'extraction du DMA établie par Heim *et al.* (2004).

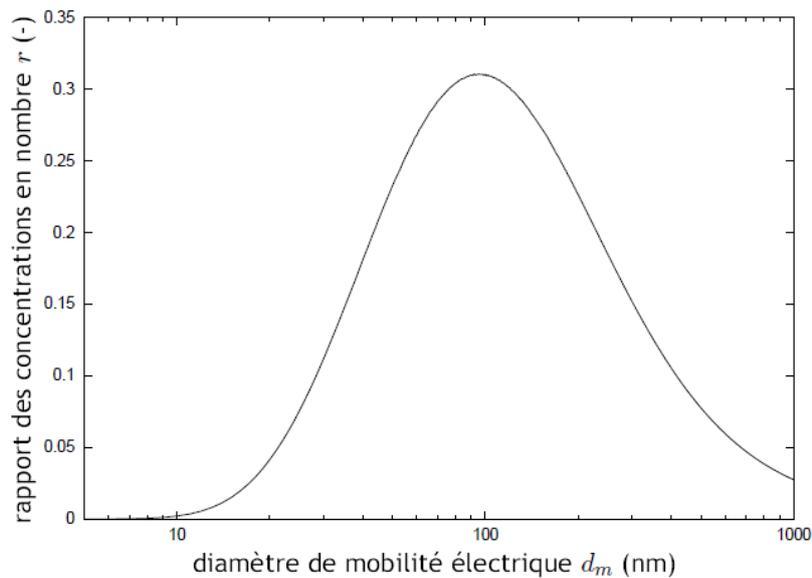


figure 2-14 : Evolution du rapport des concentrations en nombre r des particules portant -2 charges par rapport aux particules portant -1 charge en fonction du diamètre de mobilité électrique des particules sélectionnées au sein du DMA- cas d'un aérosol initial polydispersé de diamètre médian en nombre 100 nm et un écart-type géométrique 2 (Bau, 2008)

La figure 2-14 montre qu'un maximum est atteint au niveau du diamètre médian de l'aérosol ($r = 31\%$), traduisant une augmentation du nombre de particules portant -2 charges élémentaires. Cependant dans nos expériences, ce phénomène devrait être limité puisque nous mettons en œuvre des aérosols plus fins, donc pour lesquels les probabilités de double charge sont encore plus faibles. De plus, nous effectuons un ratio entre la concentration mesurée en dehors de l'enceinte et la concentration émise, nous permettant d'envisager que les erreurs liées aux charges multiples seraient infimes dans notre étude.

2. Le comptage

L'aérosol monodispersé obtenu à l'aide du DMA est ensuite envoyé vers le compteur à noyaux de condensation (CNC), grâce auquel nous allons obtenir la concentration en nombre. Sachant que des particules ayant un diamètre inférieur à 100 nm ne pourront pas être détectées par des méthodes optiques classiques, la technique retenue est d'accroître leurs dimensions par condensation de vapeur, la détection optique devenant possible par le biais d'un faisceau laser (figure 2-15).

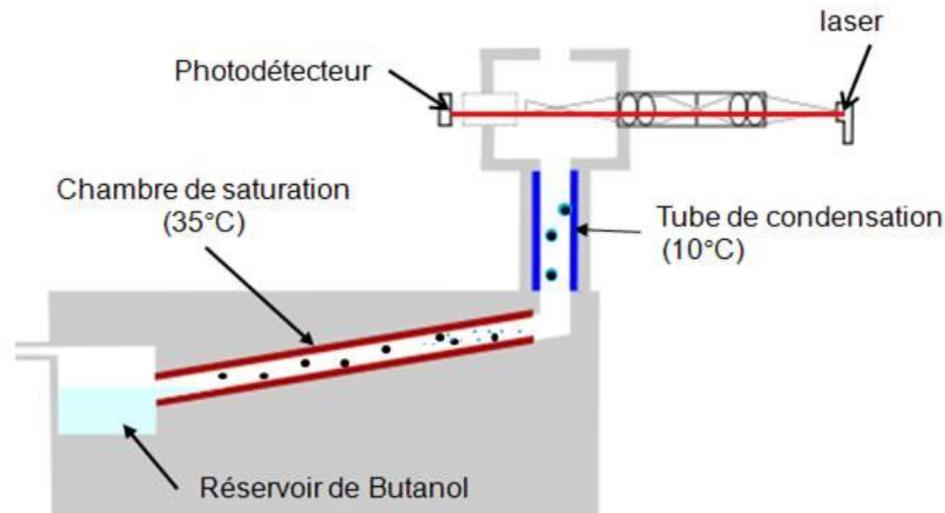


figure 2-15 : Principe de mesure d'un CNC

Les particules, après avoir pénétré dans la chambre de saturation qui est le lieu d'adsorption des molécules d'alcool sur ces mêmes particules, passent au travers d'un tube de condensation. Les particules deviennent alors les noyaux de condensation des vapeurs d'alcool, engendrant ainsi un accroissement de la taille des particules (Hinds, 1999) ; celles-ci sont ensuite orientées vers le détecteur optique.

Le CNC est considéré comme un instrument de référence pour la mesure de la concentration en nombre. Il existe de nombreux modèles différents, qui pour la plupart ont fait l'objet d'études ; deux paramètres sont généralement retenus pour caractériser ces appareils, à savoir, le diamètre pour lequel son efficacité de comptage est de 50 % (noté $d_{50\%}$) et la concentration en nombre maximale. Les valeurs obtenues pour des CNC standards sont présentées dans le tableau suivant :

tableau 2-6 : Caractéristiques de quelques compteurs à noyaux de condensation standards

Modèle	$d_{50\%}$ (nm)	C_{Nmax} (p.cm ⁻³)	Auteurs
TSI 3007	10	10^5	Hämeri <i>et al.</i> (2002)
TSI P-Trak 8525	20	$5 \cdot 10^5$	Matson <i>et al.</i> (2004)
TSI 3025A	3	10^5	Kesten <i>et al.</i> (1991)
TSI3022A	7	10^7	Sem (2002)
TSI 3786	2,5	10^5	Mordas <i>et al.</i> (2008)
GRIMM 5.403	7,5 ^a	10^7	Heim <i>et al.</i> (2004)

^a Le constructeur indique une valeur de 4,5 nm établie sur des aérosols d'argent et d'oxyde de tungstène. Heim *et al.* (2004) ont pour leur part réalisé la courbe d'efficacité de comptage sur des aérosols de chlorure de sodium.

Le compteur utilisé lors de nos travaux de thèse, est un CNC GRIMM 5.403. Cet appareil fonctionne suivant deux modes en fonction du niveau de concentration en nombre atteint. En effet, en dessous d'une concentration de 10^4 part.cm⁻³, la

détection se fait sur le mode comptage singulier (single-count mode) avec une correction apportée sur la possible coïncidence de plusieurs particules devant le photodétecteur à partir de $10^3 \text{ part.cm}^{-3}$. De 10^4 à $10^7 \text{ part.cm}^{-3}$, la détection est réalisée davantage par le biais d'une estimation du nombre plutôt que par comptage, c'est le mode photométrique.

2. Mesure de la fluorescence de l'échantillon

Comme nous l'avons rapidement évoqué plus haut, il est possible de calculer la concentration massique d'uranine à partir de la mesure de la fluorescence de l'échantillon prélevé. La technique de mesure est dite intégrée ou différée puisque, contrairement à la mesure faite par le SMPS, on ne dispose pas d'une mesure en temps réel. Effectivement, il faut au préalable prélever sur filtre une quantité suffisante d'uranine ; l'échantillon ainsi obtenu est dilué dans une solution d'eau ammoniacale, laquelle permet d'exacerber le signal de fluorescence. La concentration molaire C_{ms} en uranine contenue dans la solution est alors mesurée par fluorimétrie classique. Le principe de fonctionnement de cette technique de détection repose sur l'excitation de la solution fluorescente à l'aide d'une lumière monochromatique), correspondant à une longueur d'onde constante de 482 nm égale à la longueur d'onde du maximum d'absorption de la substance testée. Une partie de la lumière absorbée est alors réémise à une longueur d'onde caractéristique (520 nm pour l'uranine). La loi de Beer-Lambert permet alors d'écrire le flux transmis I_t par une solution en fonction du flux lumineux incident I_0 comme suit :

$$I_t = I_0 \cdot e^{-\varepsilon C_{ms} l} \quad \text{équation II.15}$$

avec ε le coefficient d'extinction molaire exprimé en $\text{L.mol}^{-1}.\text{cm}^{-1}$; il dépend de la longueur d'onde, de la nature chimique de l'entité et de la température. l est la longueur du trajet optique dans la solution traversée, correspondant à l'épaisseur de la cuvette utilisée (en cm) ; C_{ms} s'exprime en mol.L^{-1} .

L'intensité fluorescente I_F , proportionnelle au flux de lumière absorbé par la solution, s'écrit :

$$I_F = I_0 \cdot \Phi \cdot (1 - e^{-\varepsilon C_{ms} l}) \quad \text{équation II.16}$$

Φ est un facteur de proportionnalité appelé rendement quantique.

Puisque l'intensité fluorescente est mesurée par le fluorimètre, on peut aisément remonter à la valeur de C_{ms} à l'aide de l'équation II.16. La masse m d'uranine recueillie sur un filtre peut alors s'écrire comme :

$$m = C_{ms} \cdot V_{\text{dilution}} \cdot M \quad \text{équation II.17}$$

avec V_{dilution} le volume d'eau ammoniacale ayant servi à la dilution en litre, et M la masse molaire de l'uranine ($376,27 \text{ g.mol}^{-1}$).

La concentration massique d'uranine C_{ms} présente dans l'air peut être calculée à partir du volume d'air prélevé, connu. Le cycle de mesure ainsi décrit est schématisé sur la figure ci-dessous.

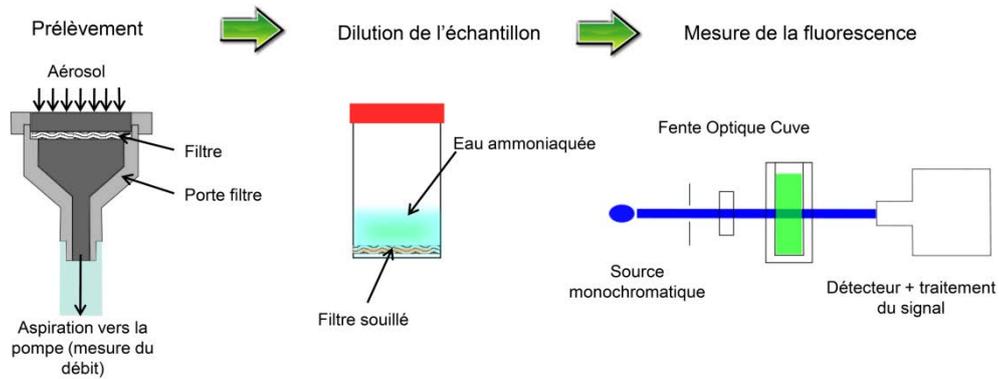


figure 2-16 : Principe de mesure de la fluorescence

Le gaz traceur utilisé est le même que précédemment (SF_6). Les techniques de traçage restent identiques à celles définies dans la partie I.5 sauf que l'instrumentation utilisée diffère. Le débit de génération est contrôlé par un manomètre calibré situé en sortie du détendeur de la bouteille de gaz, et la détection du SF_6 est assurée par un analyseur infrarouge de type Binos (Emerson). Le débit d'injection fixé pour l'ensemble des mesures est de $41,46 \text{ L.min}^{-1}$.

I.5 Génération et détection du gaz traceur

Le gaz traceur mis en œuvre, à savoir du SF_6 (hexafluorure de soufre), est produit directement à partir d'une bouteille de gaz pur sous pression équipée d'un débitmètre massique (Bronkhorst El-Flow) pour le banc INRS et d'un manomètre calibré pour le banc IRSN, afin de contrôler le débit d'émission. La concentration en gaz est obtenue à l'aide d'un analyseur de vapeur spécifique InfraRan à l'INRS (Wilks instruments) ou d'un analyseur infrarouge de type Binos à l'IRSN (Emerson). Cet analyseur est un spectromètre infrarouge (IR) mono faisceau, permettant des mesures dans l'air ambiant d'un gaz spécifique. Il est adapté à la mesure de n'importe quel composé ayant une bande d'absorption dans l'infrarouge, comprise entre $2,5$ et $14,5 \text{ }\mu\text{m}$. Le SF_6 est adapté pour ce type de détection car il absorbe particulièrement bien les radiations IR à des longueurs d'onde de l'ordre de $10,5 \text{ }\mu\text{m}$ (Morrow, 1987). Le fonctionnement de l'ensemble de détection est présenté sur la figure 2-17. Une pompe, intégrée au système, aspire l'air échantillonné à l'intérieur d'une chambre équipée de plusieurs miroirs se faisant face. Un faisceau laser infrarouge est alors émis en direction d'un de ces miroirs. Le faisceau effectue des va-et-vient dans cette atmosphère chargée en gaz traceur, ce qui entraîne une

baisse d'énergie due à l'absorption du gaz à la longueur d'onde spécifique. Grâce au phénomène d'allers-retours dans la cellule de mesure, la quantité d'énergie absorbée est conséquente, et donc, le signal peut être mesuré. Il est alors converti en signal électrique et, par le biais d'un étalonnage, transformé en concentration de gaz traceur par volume d'air ; l'unité retenue est la partie par million (ppm).

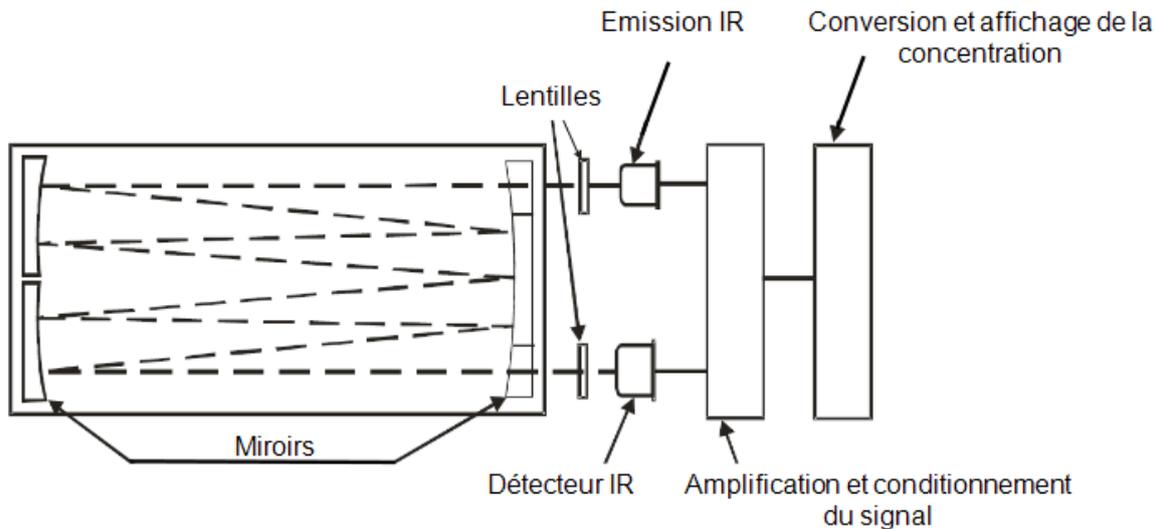


figure 2-17 : Représentation schématique du fonctionnement d'un spectromètre à infrarouge

Chapitre II. Mise au point des protocoles expérimentaux

II.1 Essais inspirés par l'essai de type par dispersion d'iodure de potassium (KI-Discus)

Le banc INRS a connu de nombreuses évolutions au cours des trois années. Les modifications ont porté sur différents aspects techniques du banc, mais aussi sur la méthodologie de mesure. Dans cette partie, les étapes majeures sont présentées.

Principe de la mesure et techniques

Cette phase de conception avait pour objectif l'évaluation préliminaire de l'efficacité de confinement en régime permanent. Pour cela, nous avons comparé différents niveaux de concentrations à l'intérieur, à l'extérieur et aux abords du PSM lorsque le dispositif est à l'arrêt puis en fonctionnement. L'efficacité de confinement pour un aérosol de nanoparticules étant inconnu, nous avons choisi d'utiliser le CNC seul, ce qui permet la mesure de la concentration totale et donc optimise les chances de détection en dehors de l'enceinte ; cependant, il ne permet pas d'obtenir d'information sur la distribution granulométrique de l'aérosol prélevé.

Situations évaluées

Les situations évaluées sont notées comme suit pour simplifier la compréhension et l'écriture par la suite :

- Situation A (bruit de fond) : la ventilation de la salle propre fonctionne alors que le PSM est à l'arrêt et qu'il n'y a aucune émission d'aérosols,
- Situation B (concentration PSM à l'arrêt) : la ventilation de la salle propre fonctionne alors que le PSM est toujours à l'arrêt ; cette fois, il y a émission de nanoparticules,
- Situation C (concentration PSM en marche) : la ventilation de la salle propre ainsi que le PSM sont en fonctionnement et il y a toujours émission de nanoparticules.

Positions des points de mesure

Dans un premier temps, la technique de diffusion de l'aérosol de nanoparticules ainsi que le positionnement des points ont été largement inspirés de l'essai de type décrit dans la norme prEN 12469:2000, comme on peut le voir sur la figure 2-19. Ainsi les positions des points L, C et R sont identiques à celles définies dans la norme. Ces points font face à la partie inférieure de la partie vitrée, en retrait de 0,15 m par rapport à celle-ci. Le point C est centré dans la largeur, et les points L et R sont

répartis symétriquement à une distance de 0,15 m autour de ce point. Nous avons également évalué trois autres points, notés HC, B et MSC, qui correspondent respectivement à la zone respiratoire de l'opérateur, à une zone d'ambiance suffisamment éloignée du poste et à une mesure dans l'enceinte proche de la génération.

Système de prélèvement

Pour l'ensemble des points de prélèvement, les concentrations en nombre de particules sont mesurées au travers de tuyaux antistatiques. Le changement de points se fait manuellement car il n'était pas envisageable d'utiliser des électrovannes pour la commutation. En effet, le taux de dépôt pour des particules inférieures à environ 0,15 μm est inversement proportionnel aux diamètres de ces mêmes particules. De ce fait, il existe une probabilité importante de dépôt des nanoparticules dans les électrovannes mais aussi dans les tuyaux de prélèvement. Pour ces raisons, les longueurs de prélèvement doivent être les plus courtes possibles.

Le dépôt de particules dans les tubes de prélèvement peut être estimé par l'équation suivante :

$$C_{out} = C_{in} e^{-\frac{4u^*v_d^+}{Ud}L} \quad \text{équation II.18}$$

où C_{in} et C_{out} sont respectivement les concentrations en entrée et en sortie de prélèvement, L la longueur du tuyau, U la vitesse moyenne dans le tube, d le diamètre du tube, u^* la vitesse de frottement et v_d^+ la vitesse de dépôt adimensionnée des particules, qui peut être exprimé par l'équation II.19 en accord avec les travaux de Wood (1981) et en l'absence d'interaction avec les forces électrostatiques.

$$v_d^+ = 0.057 \cdot S_{CB}^{-2/3} + 4.5 \cdot 10^{-4} \cdot \tau_p^{+2} + \tau_p^+ g^+ \quad \text{équation II.19}$$

Où $\tau_p^+ = \frac{\tau u^*}{\nu_f}$ le temps de relaxation adimensionné des particules, $g^+ = \frac{g \tau_p}{\nu_f}$ la constante d'accélération gravitationnelle adimensionnée, et $S_{CB} = \frac{\nu_f}{D_B}$ le nombre de Schmidt brownien. τ_p est le temps de relaxation des particules, ν_f la viscosité cinématique du fluide porteur, D_B le coefficient de diffusion brownienne et g la constante gravitationnelle. Toutes ces grandeurs seront explicitées plus en détail dans le chapitre III.

A partir de l'équation II.18, nous avons calculé que le dépôt de particules dans les conduites de prélèvement n'excéderait pas 10 % pour une longueur de 2 m, dans la gamme granulométrique considérée [10 nm - 100 nm]. En parallèle, nous avons

mesuré expérimentalement le dépôt dans cette même gamme granulométrique, pour une conduite longue de 2 mètres. Les valeurs théoriques et expérimentales de pénétration en fonction du diamètre des particules sont présentées sur la figure 2-20. Bien que la théorie ait tendance à sous-estimer les valeurs de dépôt obtenues expérimentalement, les ordres de grandeur restent tout de même comparables. Cet écart peut être expliqué par le fait que les forces électrostatiques sont négligées dans l'expression théorique. Pour la suite, nous tiendrons compte du dépôt à partir de l'expression théorique.

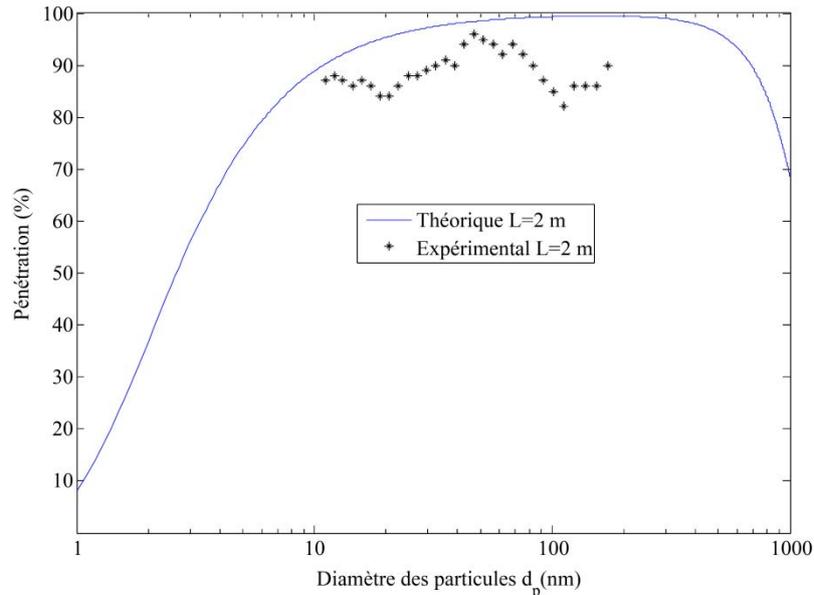


figure 2-18 : Pénétration des particules dans les tubes de prélèvement en fonction de leur diamètre

Génération de l'aérosol test

Dans la norme citée en référence, la diffusion de l'aérosol est réalisée par l'intermédiaire d'un disque tournant à $28\,000\text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$, d'axe vertical, de diamètre $0,038\text{ m}$, vers lequel la solution d'iodure de potassium est émise perpendiculairement. Dans cette première approche, le disque tournant est remplacé par un microventilateur de diamètre $0,070\text{ m}$ et tournant à $3\,200\text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$. Dans ces conditions, il a été démontré (Cesard *et al.*, 2011a) que les débits théoriques de quantité de mouvement radial induits par les deux systèmes étaient très proches ($0,6\text{ kg}\cdot\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le microventilateur contre $0,2\text{ kg}\cdot\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le disque tournant). Ainsi, les perturbations engendrées par l'un ou l'autre des systèmes de dispersion se retrouvent à des niveaux comparables. Cependant, il s'agit ici d'une étape de conception et par la suite, des améliorations ont été apportées au système de génération.

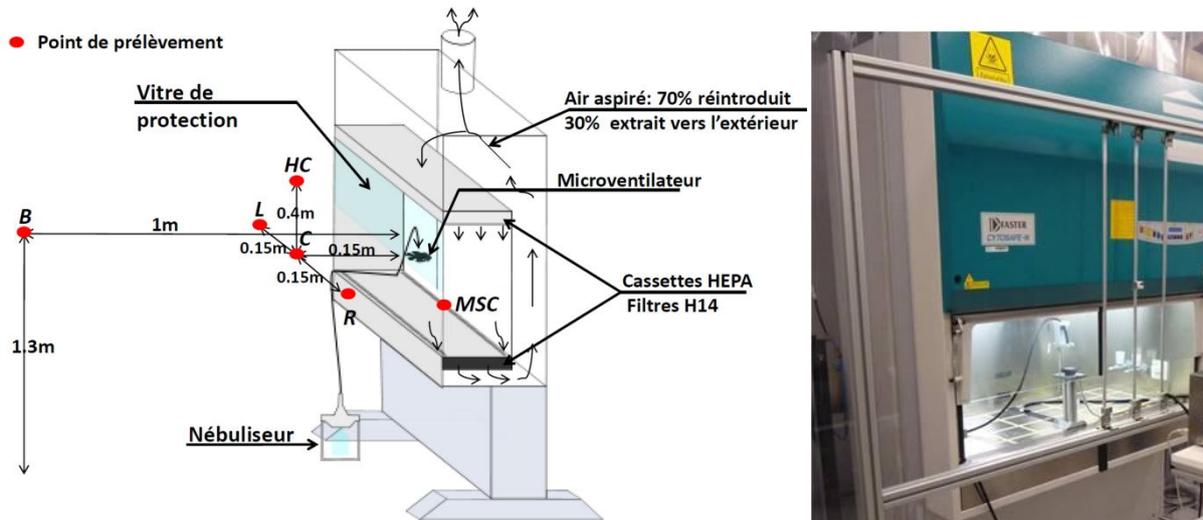


figure 2-19 : Schéma de l'installation (gauche) et photographie du dispositif de dispersion (droite)

Un nébuliseur atomise une solution liquide de NaCl concentrée à 0,1 % en masse (PALAS AGF10.0). Cet aérosol est ensuite transporté, via un tuyau antistatique, jusqu'à son lieu d'émission dans l'enceinte. Il est alors émis en direction du microventilateur, centré dans la largeur, à une hauteur de 0,315 m au dessus du plan de travail et à 0,150 m à l'intérieur du PSM.

La génération d'un aérosol sec est stable dans le temps ; la concentration totale en nombre atteint $10^7 \text{ part.cm}^{-3}$ pour un débit d'émission $Q_{a\text{ ro}}$ d'environ 42.6 L.min^{-1} . Les distributions granulométriques pour l'ensemble des essais sont tracées sur la figure 2-20 associées à leurs barres d'erreurs, définies par :

$$err_{tot} = \pm \sqrt{err_{mes}^2 + err_{95\%}^2} \quad \text{équation II.20}$$

avec err_{mes} , l'erreur de mesure liée à l'appareil et :

$$err_{95\%} = \pm t_{95\%} \left(\frac{\sigma}{\sqrt{n}} \right) \quad \text{équation II.21}$$

où $t_{95\%}$ est la valeur de la distribution de Student définie pour un intervalle de confiance de 95% et pour $n - 1$ degrés de liberté avec n le nombre de mesures effectuées ; σ l'écart-type des moyennes défini comme :

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{(n - 1)}} \quad \text{équation II.22}$$

où \bar{x} est la moyenne des mesures et x_i est la $i^{\text{ème}}$ concentration mesurée.

Le diamètre médian de mobilité électrique (d_m), l'écart-type géométrique (σ_{geo}) et la concentration totale en nombre sont des grandeurs caractéristiques des aérosols

générés et les valeurs obtenues sur le banc de caractérisation pour l'ensemble des essais, sont résumées dans le tableau 2-7. Les deux dernières distributions granulométriques (Essais 5 et 6) ont été obtenues après qu'une maintenance sur le nébuliseur ait été effectuée, ce qui explique l'écart relativement important entre les distributions de ces deux derniers essais et celles des quatre précédents.

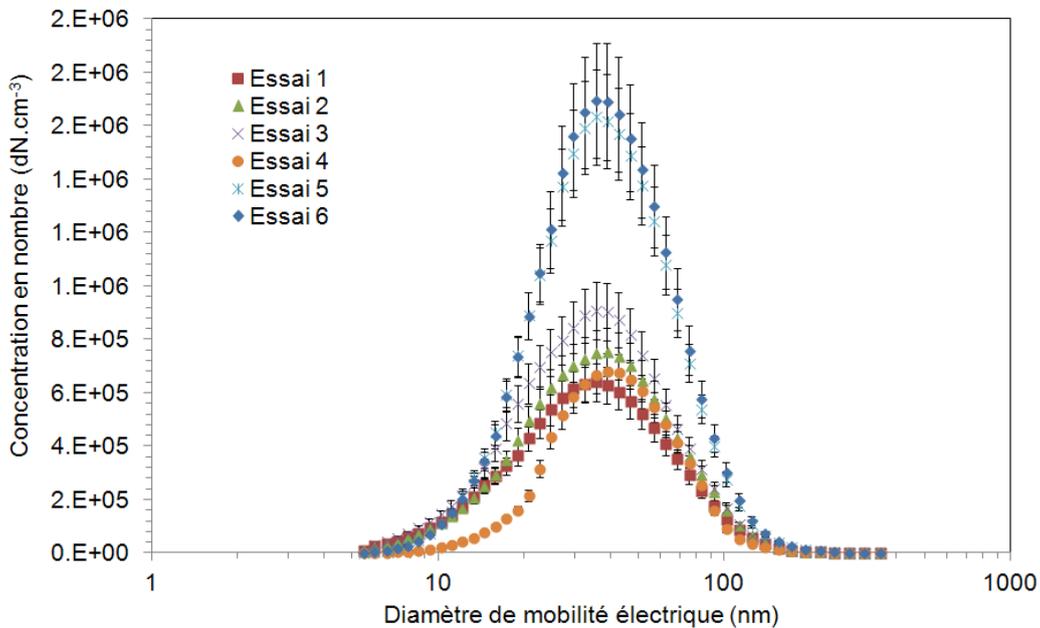


figure 2-20 : Distributions granulométriques pour chaque essai

tableau 2-7 : Grandeurs caractéristiques des aérosols générés

	Diamètre médian (nm)	Ecart-type géométrique	Concentration totale (part.cm⁻³)
Essai 1	32.5	1.91	1.07E+07
Essai 2	35.6	1.75	1.24E+07
Essai 3	32.5	1.91	1.48E+07
Essai 4	39	1.59	9.02E+06
Essai 5	35.6	1.75	2.39E+07
Essai 6	35.6	1.75	2.47E+07

Protocole d' valuation du confinement

Le protocole défini afin d'évaluer le niveau de confinement du PSM en régime permanent est alors le suivant (en 5 étapes) :

- 1- Phase d'attente de la stabilisation de la ventilation de la salle propre : 30 minutes pour atteindre un fonctionnement stable. Suivi permanent de la température, de la pression et de l'hygrométrie dans la salle propre.

- 2- Avant de débiter les mesures, une caractérisation de l'aérosol test à l'aide du banc présenté sur la figure 2-21 est effectuée.
- 3- Chaque situation (A, B et C) définie précédemment va pouvoir être évaluée. La concentration en chaque point est alors mesurée successivement. Le changement de point se faisant manuellement, il est nécessaire d'attendre plus d'un temps de renouvellement (230 s défini dans la partie Environnement de travail) entre deux mesures successives. Lors du passage à la situation C, attente de 90 minutes pour la stabilisation de la ventilation du PSM (Bonthoux, 2008).
Une fois que tous les points de mesure de toutes les situations sont étudiées, une nouvelle caractérisation de l'aérosol généré est réalisée afin d'estimer la dérive dans le temps de la source.

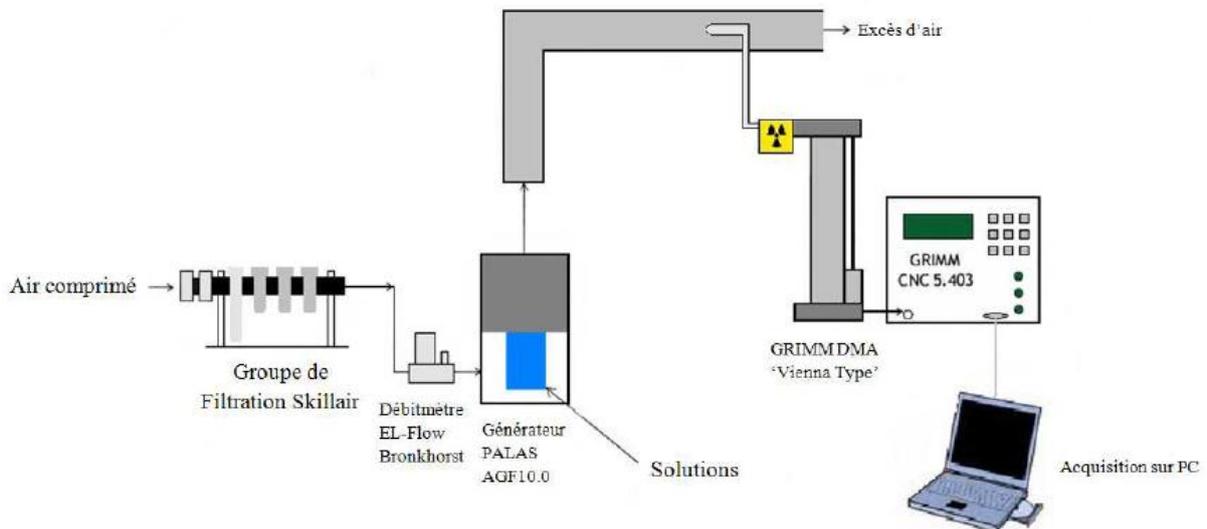


figure 2-21 : Banc de caractérisation

Pour illustrer la décroissance des fuites de nanoparticules induites par le fonctionnement du PSM, nous avons utilisé le rapport de contamination R_a défini par :

$$R_a = \frac{C_p - C_p^A}{C_{PSM} - C_{PSM}^A} \quad \text{équation II.23}$$

où C_p est la concentration en nombre à un point p pour la situation B ou C, C_p^A est la valeur mesurée au même point p mais dans la situation A (bruit de fond), C_{PSM} est la concentration en nombre à l'intérieur de la hotte pour la situation B ou C, C_{PSM}^A est la valeur correspondante dans la situation A (bruit de fond). Le coefficient R_a représente ainsi le rapport de contamination entre le point p et celui à proximité de la source.

Résultats préliminaires

Afin d'évaluer la répétabilité des expériences, nous avons répété six fois les mêmes essais. Durant une journée d'essais, les variations de température, de pression et d'humidité n'ont respectivement pas excédé 1°C, 10 Pa et 10% HR. Les concentrations en nombre pour les trois premiers essais sont obtenues en moyennant 30 mesures espacées consécutivement de 10 secondes (décorrélation) pour chaque point. Chacune de ces mesures de concentration correspond à la moyenne des particules comptées sur une période de 1 minute à un débit de prélèvement de 0,3 L.min⁻¹. Les concentrations moyennes pour ces trois premiers essais et pour chaque situation sont résumées dans le tableau 2-8. Les erreurs de répétabilité associées sont calculées à partir de l'équation II.21. Le rapport signal sur bruit correspond quant à lui à la concentration mesurée dans la situation B ou C divisée par la concentration équivalente mesurée dans la situation A (correspondant au bruit de fond). Si ce rapport est trop faible, il ne peut pas être établi avec certitude que la concentration mesurée dans la situation B ou C est issue de la source d'émission des nanoparticules. Deux points posent problème de ce point de vue, les points B et HC. En effet, d'une part les rapports signal/bruit de fond sont souvent inférieurs à 100 pour la situation C, avec des niveaux de concentration trop faible pour une analyse granulométrique ultérieure. D'autre part, c'est également sur ces points que l'on obtient des fluctuations importantes lors d'un même essai (l'erreur de répétabilité atteignant 30% pour le point HC). Pour réduire les temps d'acquisition afin d'augmenter le nombre de situations testées (nature de la source et ajout de perturbations extérieures), il a été décidé de réduire les 30 mesures successives à 10, et dans le même temps, nous avons retiré les points B et HC de la grille de mesure (fluctuations trop importantes). Les résultats obtenus en termes de concentration pour cette nouvelle configuration sont présentés dans le tableau 2-9. Les coefficients Ra moyens sur les trois derniers essais obtenus pour les situations B et C sont également présentés sur la figure ci-dessous.

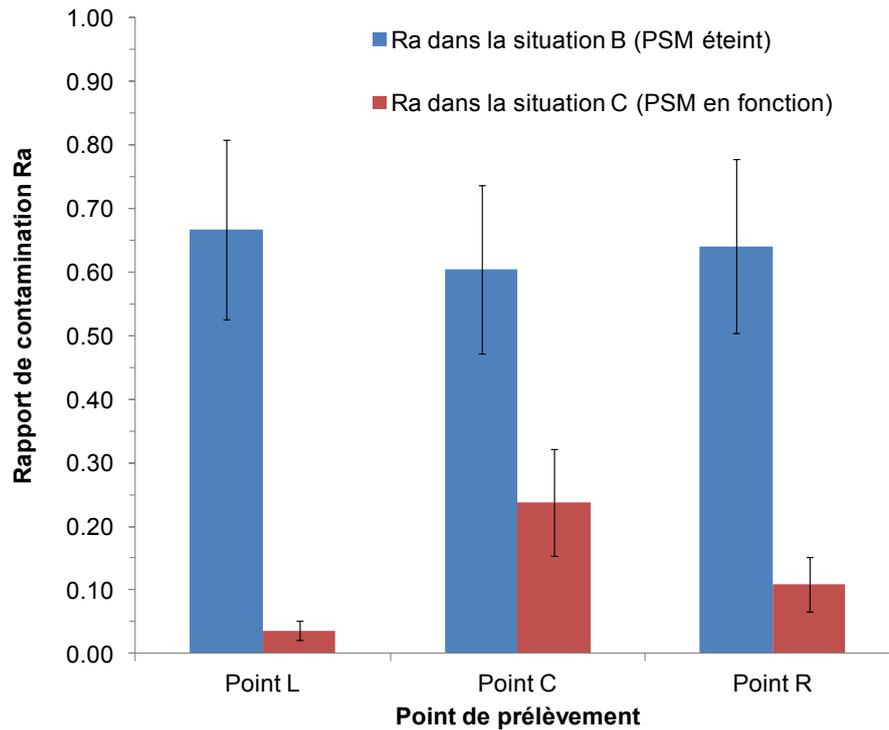


figure 2-22 : Valeurs de Ra moyens sur les trois derniers essais et pour les point L, C et R

On constate une diminution significative de la rétrodiffusion dès lors que le PSM est en fonctionnement. Globalement, sur l'ensemble des points évalués et sur les trois essais successifs considérés, il existe en effet, un facteur 10 entre les coefficients de rétrodiffusion obtenus dans la situation B (PSM éteint ; en bleu sur le graphique ci-dessus) et ceux obtenus dans la situation C (PSM en fonction ; en rouge sur le graphique ci-dessus).

tableau 2-8 : Concentrations en nombre, valeurs d'erreurs et rapports signal/bruit de fond pour chaque situation et pour les trois premiers essais

Situation	A (bruit de fond)		B (PSM éteint)			C (PSM en fonction)			
	Position	Concentration moyennée (part.cm ⁻³)	Erreur associée (part.cm ⁻³)	Concentration moyennée (part.cm ⁻³)	Erreur associée (part.cm ⁻³)	rapport signal/bruit de fond	Concentration moyennée (part.cm ⁻³)	Erreur associée (part.cm ⁻³)	rapport signal/bruit de fond
Essai 1	B	1.7	0.3	1.22E+03	2.73E+02	7.27E+02	1.68E+02	2.11E+01	1.00E+02
	PSM	36.5	3.8	3.91E+05	3.94E+04	1.07E+04	2.52E+04	2.62E+03	6.89E+02
	L	11.4	1.2	2.19E+05	2.19E+04	1.92E+04	1.56E+03	2.45E+02	1.37E+02
	C	11.0	1.2	2.73E+05	2.76E+04	2.49E+04	4.87E+03	8.90E+02	4.43E+02
	R	11.2	1.2	2.56E+05	2.59E+04	2.30E+04	2.93E+03	5.76E+02	2.62E+02
	HC	16.6	2.1	4.50E+03	1.08E+03	2.71E+02	8.37E+02	2.09E+02	5.03E+01
Essai 2	B	4.8	0.9	2.64E+04	4.45E+03	5.48E+03	1.35E+02	1.81E+01	2.80E+01
	PSM	1.5	0.2	4.26E+05	4.28E+04	2.90E+05	1.22E+04	1.30E+03	8.29E+03
	L	11.4	1.5	2.10E+05	2.11E+04	1.83E+04	1.33E+03	2.51E+02	1.16E+02
	C	0.2	0.0	2.29E+05	2.46E+04	1.30E+06	2.71E+03	4.54E+02	1.53E+04
	R	0.5	0.1	2.55E+05	2.57E+04	4.72E+05	7.18E+02	1.07E+02	1.33E+03
	HC	4.4	0.6	5.63E+04	8.45E+03	1.27E+04	1.09E+03	2.70E+02	2.46E+02
Essai 3	B	3.1	0.5	2.94E+04	3.82E+03	9.56E+03	3.11E+02	4.01E+01	1.01E+02
	PSM	37.1	3.9	6.68E+05	6.68E+04	1.80E+04	4.24E+04	4.39E+03	1.15E+03
	L	4.6	0.7	3.31E+05	3.35E+04	7.12E+04	1.31E+03	2.59E+02	2.82E+02
	C	4.1	0.7	3.67E+05	3.73E+04	8.85E+04	6.78E+03	1.08E+03	1.64E+03
	R	9.5	1.2	3.99E+05	4.01E+04	4.20E+04	4.96E+03	8.64E+02	5.22E+02
	HC	23.0	2.6	7.74E+04	9.08E+03	3.36E+03	1.18E+03	3.50E+02	5.14E+01

Position : Ambiance (B), proche de la source (PSM), à gauche face à l'ouverture (L), centré face à l'ouverture (C), à droite face à l'ouverture (R) et zone respiratoire (HC).

tableau 2-9 : Concentrations en nombre, valeurs d'erreurs et rapports signal/bruit de fond pour chaque situation et pour les trois derniers essais

	Situation	A (bruit de fond)		B (PSM éteint)			C (PSM en fonction)		
	Position	Concentration moyennée (part.cm ⁻³)	Erreur associée (part.cm ⁻³)	Concentration moyennée (part.cm ⁻³)	Erreur associée (part.cm ⁻³)	rapport signal/bruit de fond	Concentration moyennée (part.cm ⁻³)	Erreur associée (part.cm ⁻³)	rapport signal/bruit de fond
Essai 4	PSM	2.9	1.1	9.44E+05	9.47E+04	3.31E+05	3.18E+04	3.62E+03	1.11E+04
	L	3.2	0.4	6.97E+05	7.10E+04	2.19E+05	2.35E+03	5.54E+02	7.39E+02
	C	2.1	1.6	6.99E+05	7.53E+04	3.38E+05	1.60E+04	3.83E+03	7.76E+03
	R	3.2	0.5	7.15E+05	7.18E+04	2.27E+05	4.91E+03	8.16E+02	1.56E+03
Essai 5	PSM	4.4	1.0	2.30E+05	2.50E+04	5.17E+04	4.14E+04	4.25E+03	9.32E+03
	L	5.7	2.5	1.64E+05	1.81E+04	2.85E+04	8.30E+02	2.44E+02	1.45E+02
	C	6.5	1.8	1.17E+05	1.27E+04	1.81E+04	4.16E+03	1.01E+03	6.42E+02
	R	5.5	0.8	1.14E+05	1.23E+04	2.08E+04	4.64E+03	1.85E+03	8.45E+02
Essai 6	PSM	5.0	1.0	2.30E+05	2.56E+04	4.60E+04	5.34E+04	5.47E+03	1.07E+04
	L	35.1	4.9	1.27E+05	1.33E+04	3.61E+03	8.37E+02	5.22E+02	2.39E+01
	C	29.6	4.2	1.29E+05	1.58E+04	4.37E+03	5.85E+03	1.50E+03	1.98E+02
	R	24.8	3.2	1.53E+05	1.75E+04	6.20E+03	3.26E+03	1.30E+03	1.32E+02

Position : proche de la source (PSM), à gauche face à l'ouverture (L), centré face à l'ouverture (C) et à droite face à l'ouverture (R).

Les erreurs de répétabilité associées aux mesures de concentration pour les essais 4, 5 et 6 sont comprises entre 10% et 40% alors qu'elles ne dépassaient pas les 20% dans les trois premiers essais. Ceci est directement lié à la diminution du nombre de mesures sur lequel est basée la moyenne. Cependant 10 évaluations successives par point semblent être un bon compromis pour bénéficier d'un temps de mesure faible, tout en maintenant une répétabilité suffisante pour les essais ultérieurs.

II.2 Configurations expérimentales adaptées à la détection de la fluorescence

En parallèle au développement d'un banc destiné à la mesure de la distribution granulométrique de l'aérosol s'échappant d'une enceinte ventilée. Une technique basée sur la détection de la fluorescence d'un échantillon prélevé hors d'une enceinte ventilée a été explorée. Les résultats, s'ils sont positifs et en bon accord avec ceux obtenus dans la méthode utilisée à l'INRS, permettront d'envisager la caractérisation des niveaux de confinement d'enceintes ventilées lors de la manipulation de nanoparticules à l'aide de cette approche.

La grille expérimentale contient 8 points (notés 1 à 8 sur la figure 2-23) placés sur le pourtour de l'ouverture de la sorbonne. Un neuvième point (noté 9) est ajouté lorsque le mannequin est présent ; il est disposé au niveau de la zone respiratoire de l'opérateur. Les prélèvements durent 2 heures pour chaque situation testée, et on mesure le volume prélevé par chaque pompe de prélèvement à la fin de ce délai. De plus, on effectue des lessivages des 4 parois internes de l'enceinte après chaque cycle de mesure. Trois parois sont en aluminium (droite, fond et surface de travail) alors que la dernière est en PVC (gauche). Il est possible d'obtenir une valeur de dépôt moyenné sur chacune de ces surfaces.

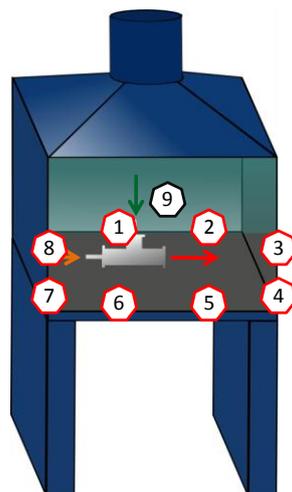
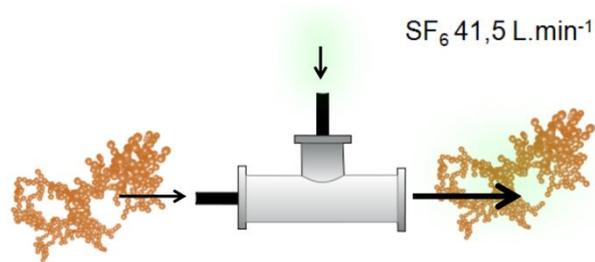


figure 2-23 : Grille expérimentale de prélèvement

L'injection dans l'enceinte se fait au travers d'un tube en T dans lequel est introduit, d'un côté l'aérosol ($42,6 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$) et de l'autre côté, le gaz traceur ($41,5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$). Le mélange étant émis vers la paroi de droite. Nous avons testé de nombreuses

configurations de fonctionnement répertoriées dans le tableau 2-10, fonction des différents paramètres relatifs à la hauteur de l'ouverture, la vitesse d'entrée d'air et la présence d'un mannequin.



Aérosol de nanoparticules
42,6 L.min⁻¹

figure 2-24 : Injection gaz et aérosol

tableau 2-10 : Configurations d'essai de la sorbonne

Configuration	Hauteur d'ouverture (m)	Vitesse dans l'ouverture (m.s ⁻¹)	Mannequin
1	0,4	0,4	non
2	0,4	0,4	oui
3	0,4	0,3	non
4	0,4	0,3	oui
5	0,4	0,2	non
6	0,4	0,2	oui
7	0,2	0,4	non
8	0,2	0,4	oui
9	0,2	0,6	non
10	0,6	0,4	non
11	0,6	1	non

Chapitre III. Optimisation du protocole INRS

III.1 Améliorations apportées sur la base des résultats préliminaires

De nombreuses modifications ont été apportées d'un point de vue technique mais aussi méthodologique à partir des premières expériences décrites dans le chapitre II de cette partie. Les principales étapes de développement du banc d'essai sont résumées ici.

Il faut rappeler que, par soucis de comparaison, en parallèle à l'évaluation nanoparticulaire, il est envisagé d'obtenir simultanément les niveaux de confinement d'un gaz traceur. Or, le PSM, de par son principe de fonctionnement (partie Banc IRSN : un Poste de Sécurité Microbiologique et figure 2-25 (a)), il engendre naturellement une différence de confinement suivant que l'on mette en œuvre un polluant gazeux ou un aérosol. En effet, les particules produites dans l'enceinte sont majoritairement piégées (l'efficacité de filtration étant de 99,995 %) par le filtre de reprise d'air tandis qu'une partie du gaz est réintroduite en partie haute de l'enceinte. Afin de rendre le fonctionnement du dispositif similaire pour un aérosol et pour un gaz, nous avons choisi de modifier le fonctionnement du PSM, sans toutefois altérer ses propriétés aérauliques. Les changements apportés permettent ainsi d'extraire la totalité du flux aspiré dans l'enceinte via une ouverture créée dans la partie basse (figure 2-25 (b)). Dans le même temps, la veine de recyclage a été obturée et nous avons ajouté une arrivée d'air neuf dans la partie supérieure du PSM. Lors de chaque essai, des mesures de débit, de vitesse et de pression en différents points dans l'enceinte ont été effectuées afin de s'assurer que les conditions aérauliques entre les deux situations (avant et après modifications) restent les plus proches possibles.

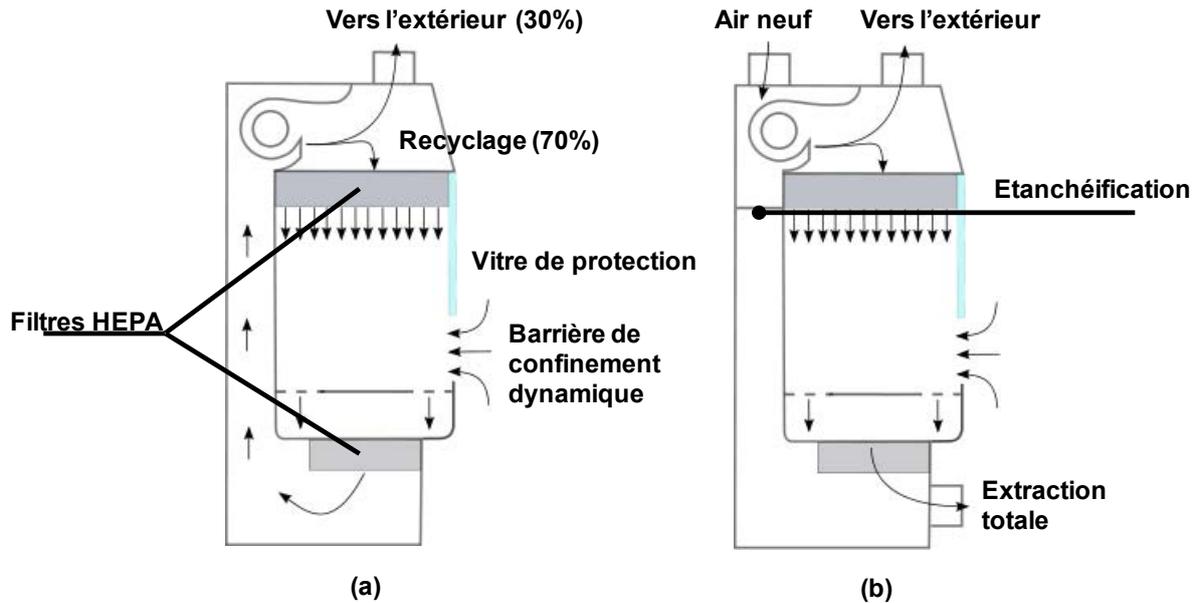


figure 2-25 : Fonctionnement du PSM avant modification (a) et après modification (b)

Les grandeurs ainsi mesurées après modification du PSM sont moyennées sur l'ensemble des journées d'essai, et présentées dans le tableau ci-dessous, en regard des valeurs équivalentes obtenues avant modification.

tableau 2-11 : Mesures aérauliques avant et après les modifications sur le PSM

	avant modifications	après modifications	erreur sur la mesure	écart relatif
Prise de pression Filtre bas (Pa)	-192.0	-190.7	± 5%	0.67%
Prise de pression Filtre haut (Pa)	152.0	147.2	± 5%	3.15%
Vitesse descendante moyenne (m.s ⁻¹)	0.405	0.394	± 10%	2.81%
Débit total extrait (m ³ .h ⁻¹)	1337.0	1351.0	± 3%	-1.05%

Les modifications ont entraîné de légères variations sur l'ensemble des grandeurs prises comme témoins, le plus grand écart étant observé sur la prise de pression dans le filtre haut, la valeur étant plus faible d'environ 3% après les modifications ; cette diminution est également constatée également sur la mesure de la vitesse descendante (environ 3 %). Les écarts relatifs observés sur les mesures de pression en partie basse et de débit total extrait sont inférieurs aux erreurs liées aux mesures respectives, ce qui rend négligeables les effets de la modification. Il n'est donc pas abusif de considérer que les changements apportés au PSM n'ont pour ainsi dire aucun effet notable sur son comportement aéraulique standard.

Le dispositif de dispersion de l'aérosol dans le PSM a ensuite été modifié. Le microventilateur s'est vu remplacé par un diffuseur de forme conique au travers duquel l'aérosol de nanoparticules mélangé au gaz traceur, est émis à une vitesse moyenne de l'ordre de 0,7 m.s⁻¹ en direction de l'ouverture (figure 2-26).

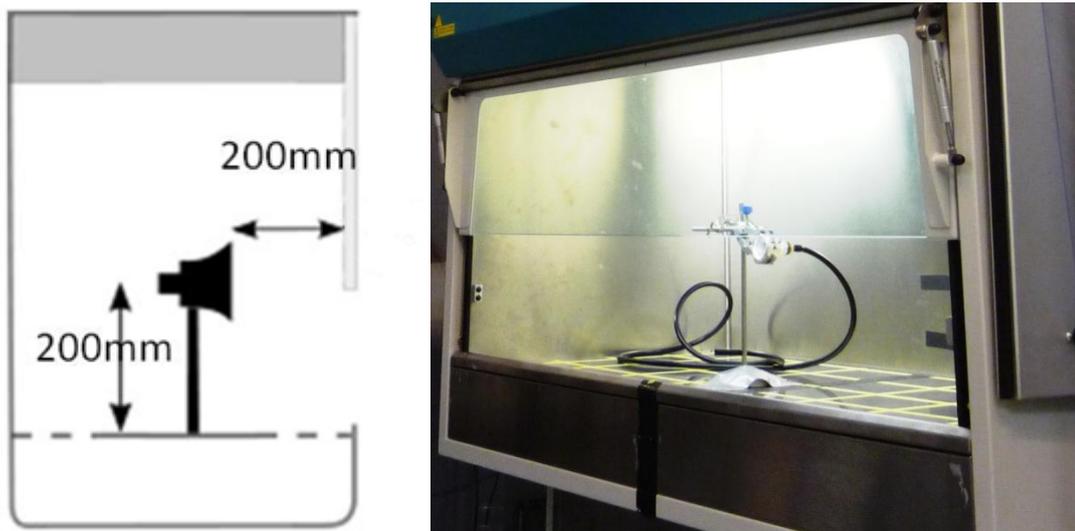


figure 2-26 : Position du diffuseur conique dans le PSM

Pour limiter les temps d'acquisition en regard des premiers essais réalisés, nous avons simplifié le protocole de mesure. Le concept est alors légèrement différent, les résultats n'étant plus présentés en comparant deux situations (PSM en marche et PSM à l'arrêt). Ainsi, le niveau de confinement n'est plus représenté par le rapport de contamination R_a (équation II.23), mais par le coefficient de rétrodiffusion K défini dans la partie Chapitre II à l'aide de l'équation I.3. De la même façon qu'il avait été écrit pour un polluant gazeux, nous pouvons définir le coefficient de transfert, K_{nano} , pour un aérosol de nanoparticules comme suit :

$$K_{nano} = \frac{C_p - C_p^A}{Q_S} \quad \text{équation II.24}$$

avec C_p la concentration en nombre à un point p lorsque le PSM et la source sont actifs, C_p^A la valeur mesurée au même point p , mais dans la situation A (bruit de fond) et Q_S le débit de référence ($\text{part} \cdot \text{s}^{-1}$). Plus le coefficient de rétrodiffusion est faible et plus le niveau de confinement atteint est élevé.

Cette nouvelle approche permet de s'affranchir des mesures de concentrations lorsque le PSM est à l'arrêt et que la source émet, mais permet également la suppression d'un point de référence proche de la source (point PSM) qui n'intervient pas dans l'expression de K . Sachant que ce point n'était pas particulièrement représentatif du niveau de pollution à l'intérieur du PSM puisque la répartition de l'aérosol est homogène dans l'enceinte, il semble alors plus judicieux de fixer le débit d'aérosol comme valeur de référence, plus stable et facile à contrôler. Par conséquent, le nombre de situations à évaluer est réduit de trois à deux. Il ne reste plus qu'à évaluer la situation dite de bruit de fond (ancienne situation A) et la situation PSM actif avec émission de nanoparticules et de gaz traceur (ancienne situation C).

Le nouveau protocole de mesure est alors le suivant :

- 1- Phase d'attente de la stabilisation de l'ensemble (PSM + ventilation dans la salle propre) : 90 minutes pour atteindre un fonctionnement stable. Suivi permanent de la température, de la pression et de l'hygrométrie dans la salle propre.
- 2- Caractérisation de l'aérosol généré à l'aide du banc présenté sur la figure 2-21.
- 3- Evaluation de la situation de référence (bruit de fond) et de la situation source active. La distribution granulométrique en chaque point est alors mesurée successivement à l'aide du SMPS-C. Le changement de point ne se fait plus manuellement mais par l'intermédiaire de vannes trois voies automatisées, il n'est donc plus nécessaire d'attendre un temps de renouvellement entre deux mesures successives.
- 4- Une fois tous les points de prélèvement de toutes les situations mesurés, une nouvelle caractérisation de l'aérosol test est effectuée afin d'estimer sa potentielle dérive dans le temps.

III.2 Résultats intermédiaires

Nous avons alors réalisé une nouvelle campagne de mesure dans la nouvelle configuration du PSM. Les prélèvements ont été réalisés sur deux jours successifs. Sur l'ensemble des essais, les conditions expérimentales ont été les suivantes : $23,4 \pm 1,7$ °C pour la température ambiante, $50,0 \pm 3,1\%$ pour l'humidité relative et $961,5 \pm 9,8$ hPa pour la pression atmosphérique. L'évolution des coefficients K_{nano} moyennés sur l'ensemble des deux jours d'évaluation pour chaque point (L, C et R), en fonction du diamètre de mobilité électrique, est présentée sur la figure 2-27.

Les résultats sont présentés sur l'intervalle de taille [11,1 nm ; 111,9 nm]. La valeur 11,1 nm correspond à la limite basse de détection de la grande colonne du DMA et au-delà de 111,9 nm, la concentration mesurée en dehors de l'enceinte n'est plus suffisamment élevée pour être significative. La première chose frappante au regard de ces résultats est que le coefficient de rétrodiffusion semble fortement dépendant du diamètre. En effet, le coefficient K_{nano} observé pour la classe de diamètre médian de 11,1 nm est en moyenne, sur l'ensemble des points, 3 fois plus important que le K_{nano} observé pour la classe de diamètre médian de 111,9 nm. A partir des hypothèses exposées dans l'état de l'art, on s'attendait plutôt à obtenir un profil de K_{nano} indépendant du diamètre des particules ou tout au plus proportionnel à ce même diamètre.

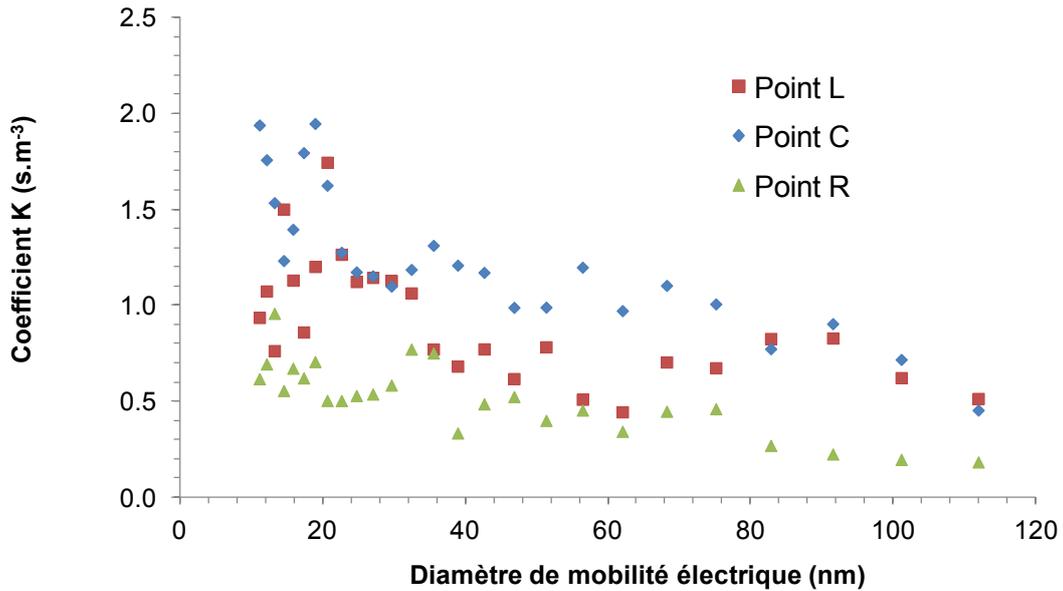


figure 2-27 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion K_{nano} en fonction du diamètre des particules et pour les trois points évalués

Comme nous l'avons déjà dit, le transport des particules de telles dimensions est principalement régi par les mouvements du fluide porteur (moyen et turbulent) ainsi que la diffusion brownienne dans une moindre mesure, les effets d'inertie et de gravité étant négligeables. La vitesse de dépôt est inversement proportionnelle au diamètre des particules en ce qui concerne la gamme de taille observée et les phénomènes de coagulation/agglomération sont estimés comme relativement lents du fait des concentrations ($\sim 10^7$ part.cm⁻³) et des temps de résidence insuffisants. A priori, nous ne pouvons pas expliquer l'évolution du coefficient de rétrodiffusion obtenu à partir de ces deux phénomènes de transfert ; ainsi, nous avons pensé qu'il pouvait s'agir d'un biais de mesure. Nous avons vu lors du descriptif du matériel de mesure que le CNC avait deux modes de fonctionnement, la limite entre les deux étant située aux alentours de 10^4 part.cm⁻³.

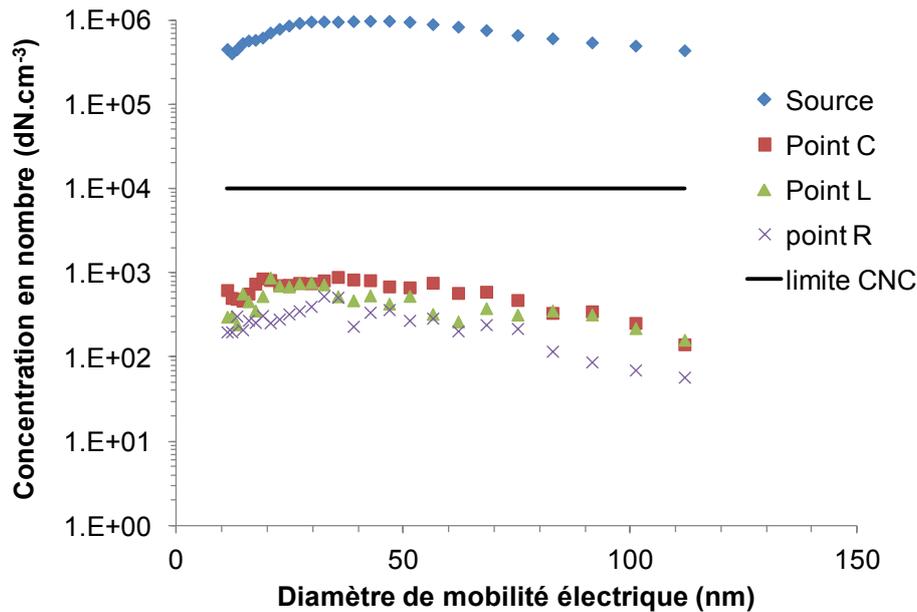


figure 2-28 : Niveaux de concentration pour la source et les différents points de mesure ainsi que la limite entre les deux méthodes de fonctionnement du CNC

Si on observe les niveaux de concentration en nombre observés à la source et pour chaque point de mesure (figure 2-28) en regard de cette limite de détection, on constate que les concentrations mesurées directement en sortie de source sont obtenues dans le mode photométrique du CNC, alors que les concentrations mesurées en dehors de l'enceinte sont réalisées en mode single-count. Cette différence dans les modes de fonctionnement peut introduire des erreurs suffisamment importantes pour fausser les résultats. Pour corriger ce problème, nous avons inséré un diluteur (Palas VKL 100) dans le banc de prélèvement (figure 2-21) entre la génération et le prélèvement par le SMPS. Le contrôle du facteur de dilution se fait par l'intermédiaire d'un manomètre. Le principe de prélèvement ainsi modifié est représenté sur la figure 2-29. Soient N_E et N_M , les concentrations numériques respectivement obtenues en sortie du générateur de nanoparticules et en sortie du diluteur, Q_E , Q_P , Q_A et Q_M respectivement les débits volumiques de l'aérosol émis par la source, prélevés par le diluteur, de l'air comprimé nécessaire à la dilution et de prélèvement d'air du SMPS.

On peut alors écrire le bilan de matière suivant pour la dilution :

$$\frac{(Q_A + Q_P)}{Q_P} = \frac{N_E}{N_M} \quad \text{équation II.25}$$

Les valeurs des débits sont données par le fabricant et reportés dans le tableau 2-12 pour différentes pression d'entrée.

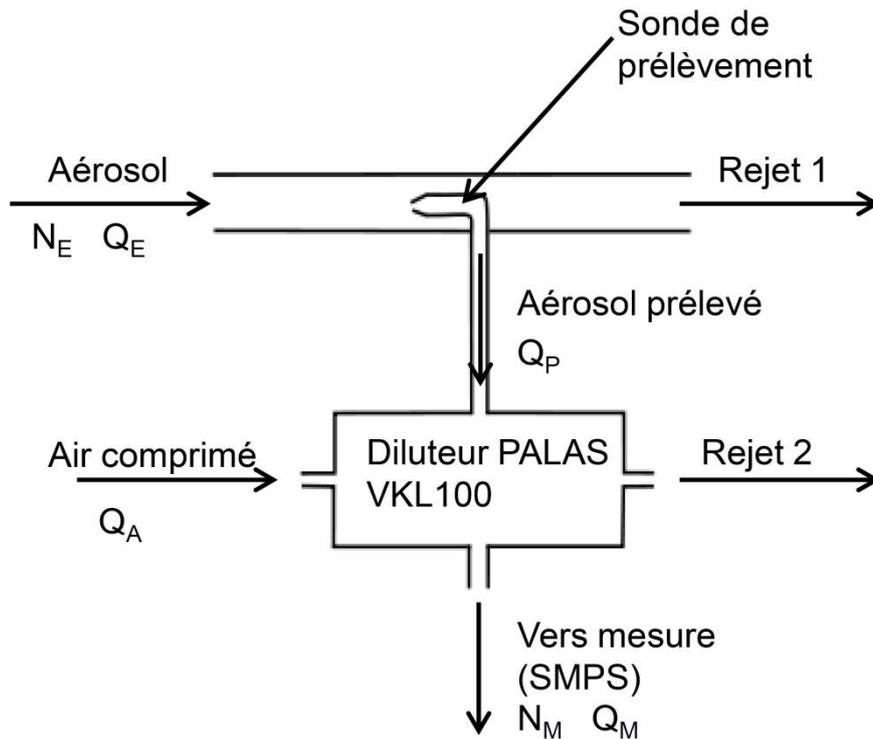


figure 2-29 : Schéma du banc de caractérisation après ajout du diluteur

tableau 2-12 : Débits et facteur de dilution (PALAS)

Pression d'entrée (bar)	Q_P (L.min ⁻¹)	Q_A (L.min ⁻¹)	N_E/N_M
0,5	0,12	17,5	147 ± 3%*
0,75	0,17	21,7	128 ± 3%
1	0,21	25,0	120 ± 3%
1,25	0,26	28,3	110 ± 3%
1,5	0,32	31,7	100 ± 3%
1,75	0,36	35,0	98 ± 3%
2	0,42	38,3	92 ± 3%
2,25	0,47	41,7	90 ± 3%
2,5	0,52	45,0	88 ± 3%

* Erreur indiquée par le fabricant

Les coefficients K_{nano} obtenus après ajout du diluteur sont présentés sur la figure 2-30. Les coefficients de rétrodiffusion calculés en utilisant les mesures de la distribution granulométrique à la source avec le système de dilution ne présentent plus ce qui pouvait ressembler à une dépendance en diamètre dans la figure 2-27.

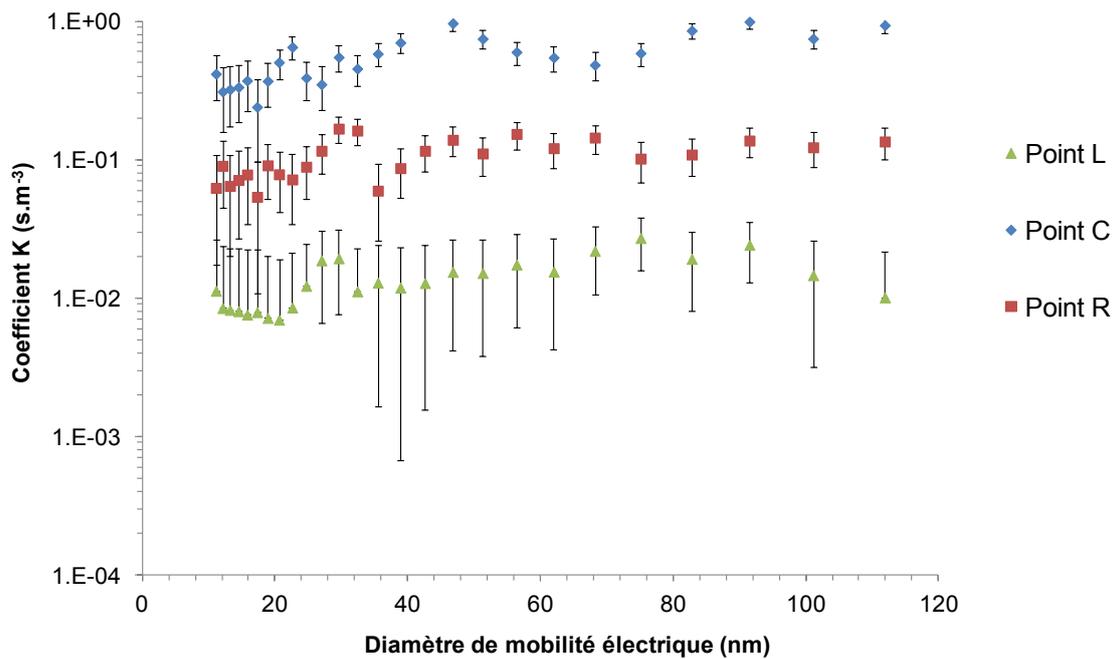


figure 2-30 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion K_{nano} en fonction du diamètre des particules et pour les trois points évalués après ajout du diluteur

Essais comparatifs nanoparticules/gaz traceur

Nous avons alors réalisé des essais en émettant simultanément l'aérosol salin et le gaz traceur. Les mesures ont porté sur les trois points L, C et R. Les résultats en termes de coefficient de rétrodiffusion pour chaque type de polluants sont présentés sur la figure 2-31. D'après ces premiers résultats, les niveaux de confinement observés sont très proches mais les fuites d'aérosol semblent légèrement supérieures.

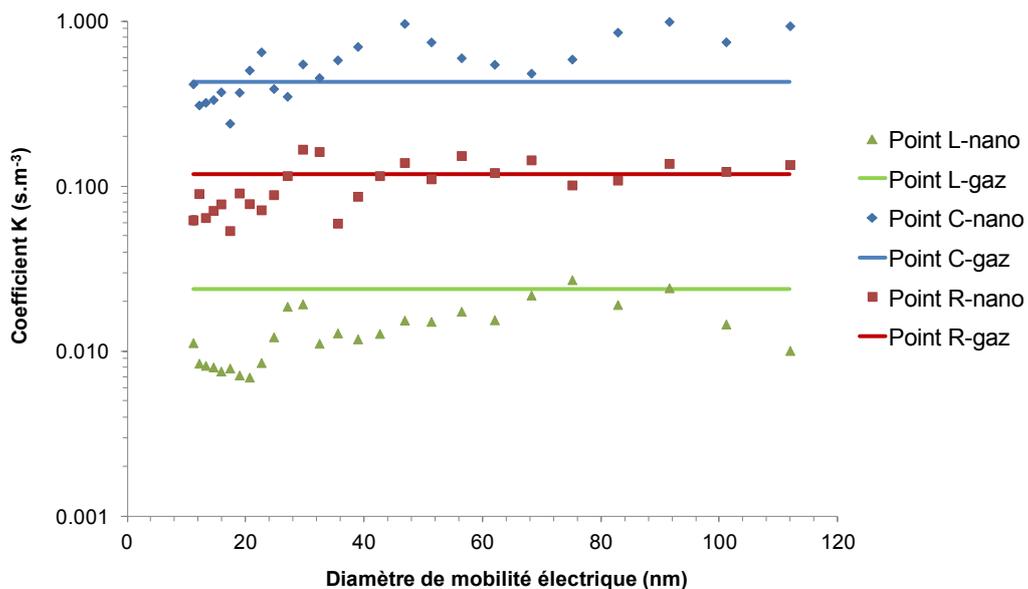


figure 2-31 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion K_{nano} (points) en fonction du diamètre des particules et valeurs gaz K_{gaz} (trait continu) équivalentes pour les trois points évalués après ajout du diluteur

Cependant, il est important de rappeler que jusqu'à présent les points de prélèvement gaz et nanoparticules ne sont pas strictement les mêmes (environ 2 cm d'écart en hauteur pour chaque point). Cet écart est suffisant pour biaiser les mesures, par conséquent, il a été décidé de rendre les deux lignes de prélèvement identiques.

III.3 Méthode expérimentale optimisée

Tous les travaux présentés dans les précédents chapitres nous ont permis de définir le cahier des charges final et surtout de développer la méthode expérimentale la plus rigoureuse et la plus adaptée à notre problématique.

Le principe de fonctionnement est schématisé sur la figure 2-32 ; on peut constater les évolutions qu'a subies le banc au cours de son développement. L'automatisation des points de prélèvement permet de diminuer les temps de mesure en limitant le nombre d'interventions dans la salle propre, qui doivent être à chaque fois suivies d'un temps de décontamination de l'ordre de 230 secondes. Les prélèvements en gaz et en nanoparticules se font aux mêmes points. Les analyses gazeuse et particulaire se font alors parallèlement (débits de prélèvement de 8 L.min^{-1} pour le gaz et de $0,3 \text{ L.min}^{-1}$ pour l'aérosol). En ce qui concerne plus particulièrement la mesure de la concentration en nombre, le diluteur a été placé en parallèle. Ainsi, il est possible de diluer l'échantillon si la concentration mesurée dépasse le seuil des $10^4 \text{ part.cm}^{-3}$, de façon à respecter le mode single-count du CNC.

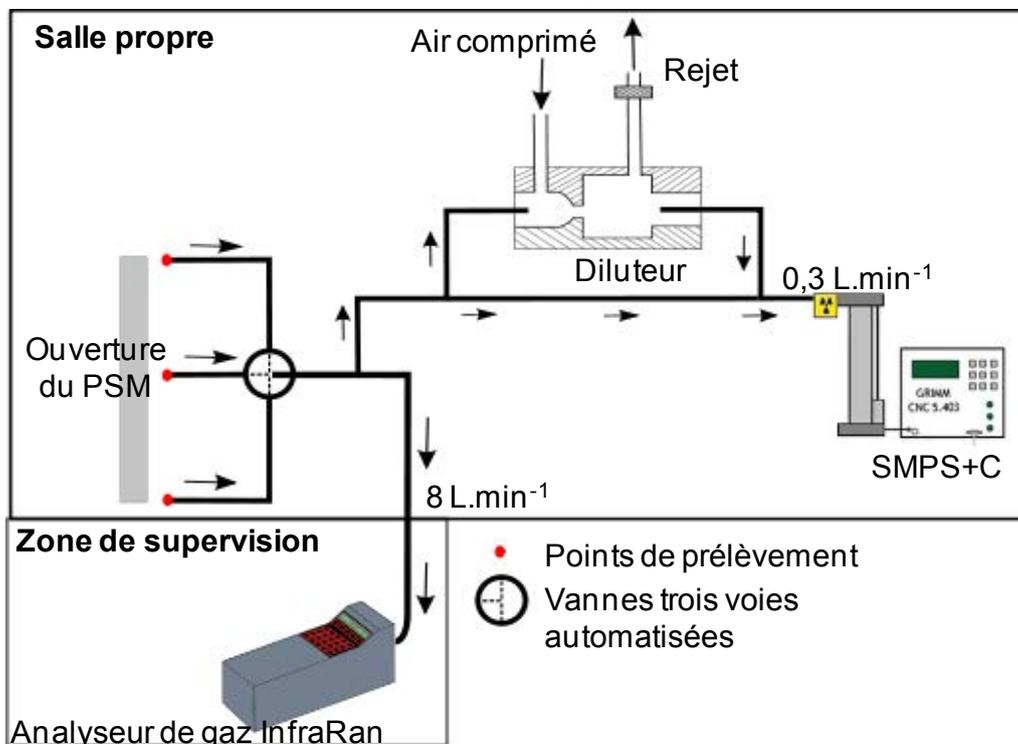


figure 2-32 : Banc expérimental définitif

Les points de prélèvement ont dû, eux aussi, être modifiés. Ils ont été rapprochés mais surtout, nous avons souhaité augmenter leur nombre afin de prendre en compte

les points situés sur le bord. En effet, c'est à proximité des parois qu'une éventuelle spécificité du comportement des nanoparticules est susceptible d'apparaître. La cartographie est détaillée sur la figure 2-33 où sont également indiquées la position et l'orientation du cône diffusant l'aérosol et le gaz traceur.

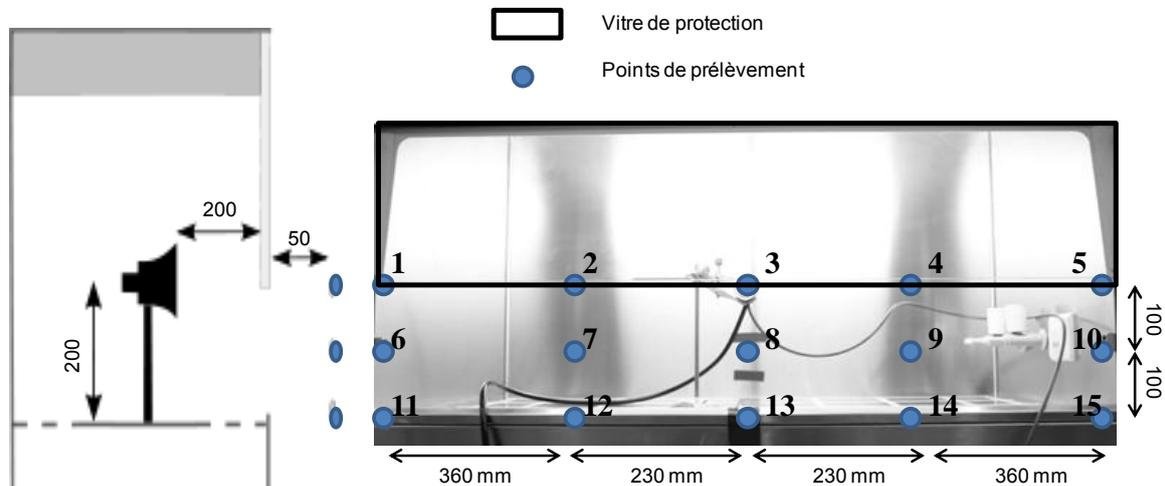


figure 2-33 : Positions des points de mesure (numérotés de 1 à 15) et de la source

Différentes configurations sont alors explorées afin d'évaluer l'influence de différents paramètres sur le confinement des aérocontaminants testés. Les performances du dispositif sont ainsi évaluées pour chacun d'eux suivant trois conditions de fonctionnement : un fonctionnement de base (absence de perturbations extérieures), un fonctionnement en présence d'un opérateur simulé par un mannequin, et enfin un fonctionnement avec le déplacement d'un opérateur devant l'enceinte, reproduit par une plaque mobile (essai de type défini dans la norme prEN 14175-3:2003 sur les sorbonnes). Les implantations des deux systèmes perturbateurs sont illustrées sur la figure 2-34.

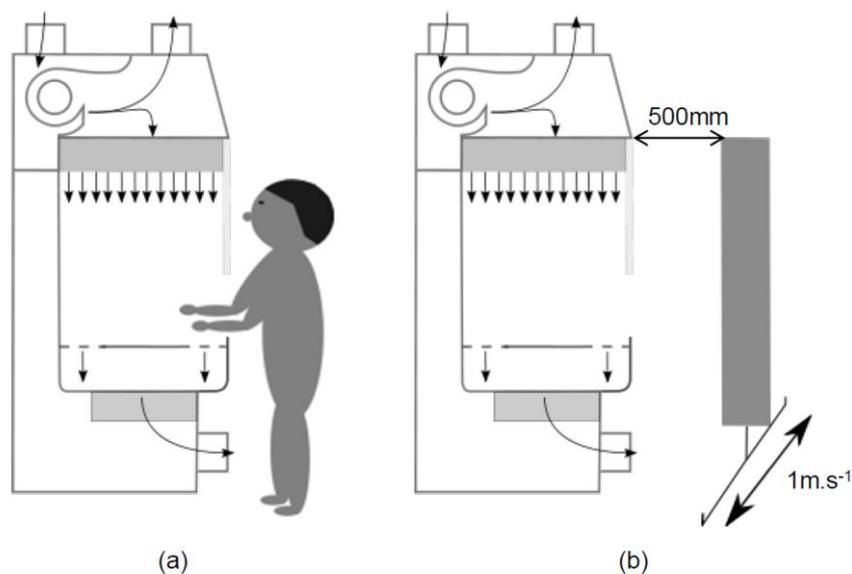


figure 2-34 : PSM en présence du mannequin (a) et avec le système de déplacement d'une plaque (b)

Dans la partie suivante, les résultats obtenus pour trois différents aérosols vont être présentés. Il s'agit de deux aérosols salins, l'un de NaCl et l'autre de fluorescéine sodée, obtenus par atomisation de solutions liquides. La fluorescéine présente l'avantage d'être un traceur spécifique. Si les résultats obtenus avec ce type d'aérosol sont comparables aux autres, ce traceur pourrait alors être utilisé comme marqueur, et les conditions nécessaires à sa détection seraient allégées du fait de sa détection spécifique (nul besoin alors de maîtriser l'empoussièrément résiduel). Ce type de test serait alors envisageable pour des mesures sur site. Cependant, la technique de détection est nettement différente de celle des aérosols classiques ; nous la présenterons dans la partie suivante, lors de la description du banc expérimental testé à l'IRSN. Le troisième aérosol testé est constitué de nanoparticules de cuivre produites à l'aide du générateur GFG équipé d'électrodes de cuivre. Nous avons choisi cet élément car, selon Bau (2007), la fraction de particules neutres générées est très élevée (>95%), ce qui permet d'évaluer indirectement l'effet de la charge de l'aérosol en comparaison avec les aérosols salins.

Chacune des conditions de fonctionnement a alors été reproduite deux fois en émettant successivement les aérosols de chlorure de sodium (NaCl,) puis de cuivre (Cu). Pour des raisons de temps, seule la configuration de base a été testée pour l'aérosol de fluorescéine. Cela représente globalement 14 jours d'essais cumulés.

Chapitre IV. Résultats et conclusions

IV.1 Caractéristiques des aérosols tests et du gaz traceur

Les distributions granulométriques moyennes pour chaque type d'aérosols sont tracées sur la figure 2-35 et les principales caractéristiques de génération (aérosol + SF₆) sont rappelées dans le tableau 2-13.

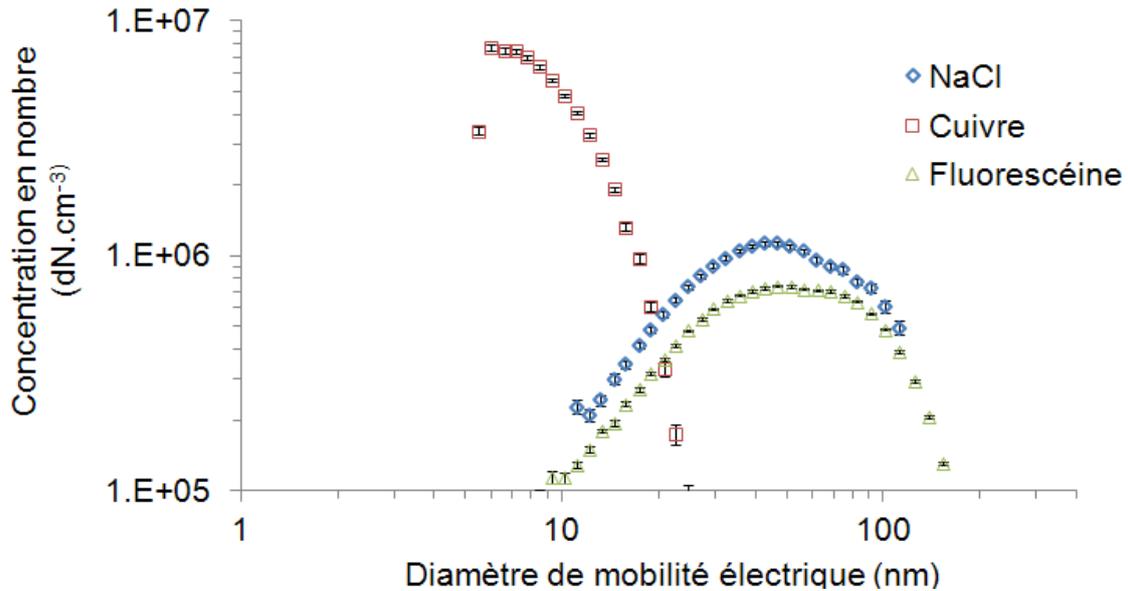


figure 2-35 : Distributions granulométriques moyennes pour chaque type d'aérosol produit à la source

tableau 2-13 : Données concernant les aérosols produits et le gaz traceur

Type d'Aérocontaminant	Générateur	Diamètre médian D_m (nm)	Ecart type géométrique σ_{geo}	Concentration en nombre ($N.cm^{-3}$)	Débit de génération	Autres données
NaCl	PALAS AGF 10.0	42,6	1,8	$1,88 \cdot 10^7$	$42,6 L.min^{-1} \pm 2 \%^*$	Concentration massique de la solution de base 0,1 %
Cuivre	PALAS GFG-1000	7,8	1,6	$6,52 \cdot 10^7$	$39,9 L.min^{-1} \pm 2 \%^*$	fréquence d'étincelle $\omega=600$; Pression d'air $P_{air} = 2$ bar et d'argon $P_{ar}=1,5$ bar
Fluorescéine	PALAS AGF 10.0	42,7	1,9	$1,44 \cdot 10^7$	$42,6 L.min^{-1} \pm 2 \%^*$	Concentration massique de la solution de base 0,025%
SF ₆	B50	-	-	-	$5,5- 218 mL.min^{-1} \pm 5 \% - \pm 2 \%^*$	Débit variable afin de ne pas saturer l'analyseur de gaz (<8 ppm)

* Calibration des débitmètres à l'aide d'un débitmètre à piston BIOS DryCal

Les aérosols produits présentent des caractéristiques différentes pour ce qui est de la distribution en nombre, mais aussi pour la dimension fractale qui dépend de la nature de l'aérosol (figure 2-36). Les morphologies observées en fonction de la nature de la nanoparticule sont très différentes ; les particules primaires se présentent sous la forme cubique pour le NaCl, alors que nous sommes en présence d'agglomérats relativement ouverts et composés de particules primaires plutôt sphériques pour le Cu. Les aérosols de NaCl et de fluorescéine possèdent des distributions granulométriques relativement proches, cependant nous n'avons aucune donnée sur la morphologie des particules de fluorescéine.

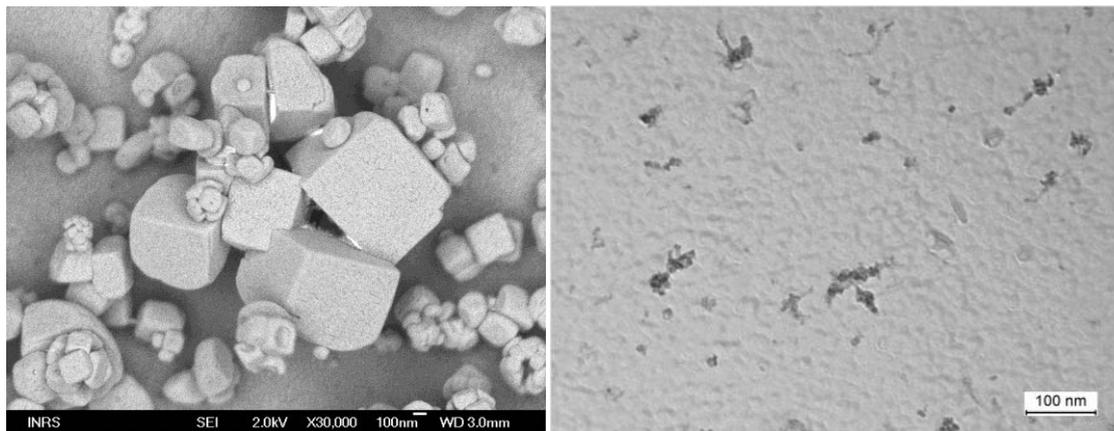


figure 2-36 : Clichés à gauche, de nanoparticules de NaCl obtenu par un microscope électronique à balayage et à droit, de nanoparticules de Cu obtenu par un microscope électronique à transmission

IV.2 Approche basée sur la détection de fluorescence

Durant les essais, nous avons constaté des problèmes pour les pompes de prélèvement individuelles correspondant aux points 5 et 8. Il semblerait qu'à plusieurs reprises ces pompes n'aient pas fonctionné. C'est ce qui explique l'absence de valeurs certaines fois pour ces deux points. Plusieurs situations ont été testées sur une journée, aucune caractérisation de l'ambiance n'a été réalisée (pression, température, hygrométrie). Une demi-journée d'attente minimum a été respectée pour le conditionnement des filtres de prélèvement de l'uranine.

Les résultats sont présentés en termes de coefficient de rétrodiffusion pour les deux types d'aérocontaminants. Le calcul du coefficient de rétrodiffusion pour le traceur gazeux est identique à la situation précédente (banc de test INRS). En ce qui concerne le coefficient de rétrodiffusion de l'aérosol d'uranine, les concentrations servant au calcul ne sont plus exprimées en nombre, mais en masse. Il est donc nécessaire de connaître le débit massique de référence de la source. Nous avons pour ce faire, effectué un prélèvement sur filtre suivi d'une analyse fluorimétrique pour obtenir la concentration massique d'uranine générée pendant une durée connue. Le prélèvement a duré 50 minutes pendant lesquels $0,819 \text{ m}^3$ d'aérosol ont

été prélevés ; la masse d'uranine déposée est de $5,79 \cdot 10^{-4}$ g. Le débit massique déduit est alors de $1,58 \cdot 10^{-10}$ kg.s⁻¹.

Les erreurs de mesure pour la concentration massique sont directement calculées lors du traitement du signal renvoyé par le fluorimètre. Le logiciel traitement des données permet d'accéder aux valeurs d'erreurs associées à la concentration calculée. Cette erreur varie de 1 % à 6 % selon la valeur affichée.

L'erreur pour la mesure gaz est définie de la même manière que dans l'équation II.20 présentée dans la partie I.5.

1. Situations testées à une ouverture de 0,4 m

Pour rappel, les points de mesure sont répartis sur le pourtour de l'ouverture tels que présentés sur la figure 2-37. La position des points 3, 4, 7 et 8 sur les bords latéraux dépend de la hauteur d'ouverture. Le point 9 n'est pas représenté, mais il est situé sur le mannequin à proximité de la bouche de celui-ci.

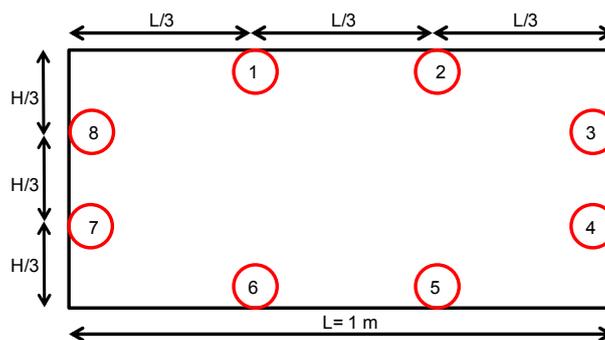


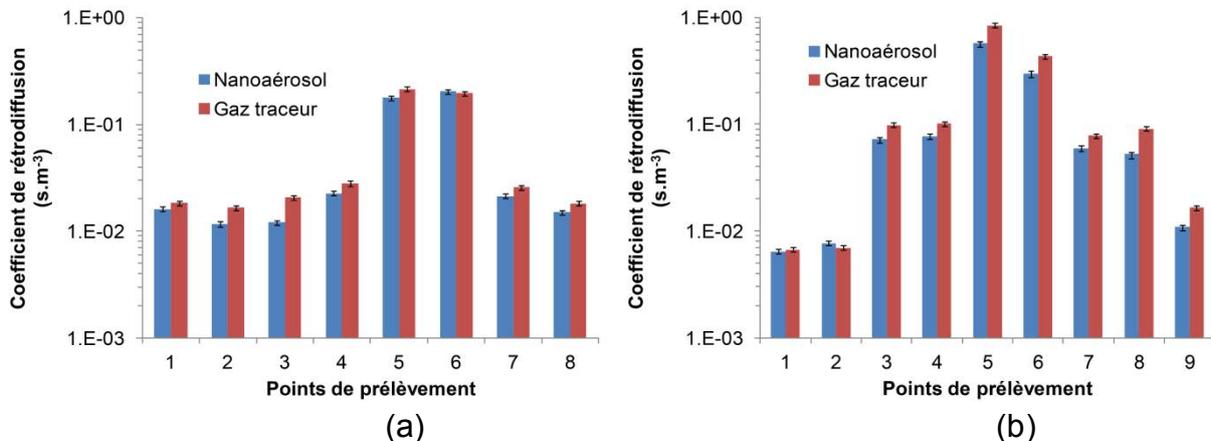
figure 2-37 : Répartition des points de mesure dans l'ouverture

Le tableau ci-dessous présente les valeurs des coefficients de rétrodiffusion dans le cas où la hauteur d'ouverture est de 0,4 m. On constate que toutes situations confondues, c'est en partie basse (points 5 et 6) que l'on observe les fuites les plus importantes (nanoparticules et gaz réunis). Les fuites sont légèrement plus importantes en partie droite (points 3 et 4) en regard de la partie gauche (points 7 et 8), cela s'explique aisément par l'orientation de la source vers la paroi de droite. Enfin les fuites sont relativement faibles en partie haute (points 1 et 2), du fait de la configuration aérodynamique de la sorbonne dont le réseau d'extraction est situé en partie haute, zone où les vitesses sont plus importantes et donc moins sensibles aux perturbations.

tableau 2-14 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion en $s.m^{-3}$ pour les deux aérocontaminants

Points de mesure	Hauteur d'ouverture 0,4 m sans mannequin						Hauteur d'ouverture 0,4 m avec mannequin					
	0,4 m.s ⁻¹		0,3 m.s ⁻¹		0,2 m.s ⁻¹		0,4 m.s ⁻¹		0,3 m.s ⁻¹		0,2 m.s ⁻¹	
	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)
1	1.6E-02	1.8E-02	2.3E-02	2.3E-02	2.0E-02	4.1E-03	6.4E-03	6.7E-03	9.4E-03	9.9E-03	6.6E-03	9.0E-03
2	1.2E-02	1.7E-02	1.4E-02	1.4E-02	4.2E-02	4.9E-02	7.7E-03	7.0E-03	8.5E-03	1.2E-02	9.4E-03	1.6E-02
3	1.2E-02	2.1E-02	1.3E-02	1.7E-02	2.0E-02	2.7E-02	7.2E-02	9.9E-02	7.9E-02	7.8E-02	7.5E-02	7.3E-02
4	2.3E-02	2.8E-02	2.5E-02	3.7E-02	2.5E+00	3.2E+00	7.8E-02	1.0E-01	3.5E-02	4.4E-02	2.8E+00	2.8E+00
5	1.8E-01	2.1E-01	-	-	-	-	5.8E-01	8.5E-01	-	-	-	-
6	2.0E-01	2.0E-01	3.2E+00	3.6E+00	3.7E+01	4.5E+01	3.0E-01	4.3E-01	9.6E+00	1.0E+01	5.5E+01	9.1E+01
7	2.1E-02	2.6E-02	1.0E-02	1.3E-02	2.2E-02	1.1E-01	6.0E-02	7.9E-02	1.5E-02	2.2E-02	8.2E-02	1.5E-01
8	1.5E-02	1.8E-02	-	-	-	-	5.3E-02	9.1E-02	-	-	-	-
9	-	-	-	-	-	-	1.1E-02	1.7E-02	1.3E-02	1.8E-02	1.6E-02	1.7E-02

Pour visualiser l'évolution du coefficient de rétrodiffusion entre les situations en présence ou non du mannequin, nous avons représenté les coefficients de rétrodiffusion en chaque point sur la figure 2.38 pour une vitesse de $0,4 m.s^{-1}$. On constate alors une augmentation globale de la rétrodiffusion lorsque l'on place le mannequin devant l'enceinte (facteur 2 pour l'ensemble des mesures de gaz comme pour les mesures d'uranine). On peut également voir que la rétrodiffusion mesurée au niveau de la zone respiratoire du mannequin (point 9) est significative.

**figure 2-38** : Coefficients de rétrodiffusion pour une vitesse d'aspiration $v=0,4 m.s^{-1}$: (a) sans mannequin et (b) avec mannequin

2. Situations testées à une ouverture de 0,2 m et 0,6 m

Le tableau ci-dessous présente les valeurs des coefficients de rétrodiffusion dans le cas où la hauteur d'ouverture est de 0,2 m, puis de 0,6 m. Les valeurs des coefficients de rétrodiffusion restent faibles pour l'ensemble des configurations à une hauteur de 0,2 m. Il n'est pas possible de décrire l'effet de la vitesse dans l'ouverture ou de la présence du mannequin sur l'efficacité de confinement dans cette situation. De plus, il manque de nombreuses valeurs dans ce tableau, les mesures ayant été effectuées à ces points de mesure n'étant pas significatives. En effet, les

concentrations mesurées étaient soit inférieures au bruit de fond naturel, soit du même ordre de grandeur que celui-ci (pour ces deux techniques de mesure, la valeur de K correspondant au seuil de détection est de l'ordre de 10^{-4} s.m^{-3}).

En ce qui concerne les mesures faites pour une ouverture de 0,6 m, les résultats varient significativement avec la vitesse d'ouverture. En effet, lorsque la vitesse est de l'ordre de $0,4 \text{ m.s}^{-1}$ la rétrodiffusion est légèrement plus élevée en partie basse (points 4, 5, 6 et 7) mais reste relativement faible. Dès lors que la vitesse est élevée à 1 m.s^{-1} , des effets de bord semblent apparaître et induisent des recirculations d'air importantes, entraînant dans leurs sillages les deux aérocontaminants. Ce phénomène est constaté principalement sur les valeurs des coefficients de rétrodiffusion mesurés aux points 6 et 7 (tableau 2-15).

tableau 2-15 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion en s.m^{-3} pour les deux aérocontaminants

Points de mesure	Hauteur d'ouverture 0,2 m						Hauteur d'ouverture 0,6 m sans mannequin					
	0,4 m.s ⁻¹		0,4 m.s ⁻¹ mannequin		0,6 m.s ⁻¹		0,4 m.s ⁻¹		1 m.s ⁻¹			
	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)	k _{nano} (s.m ⁻³)	k _{gaz} (s.m ⁻³)		
1	2.1E-03	5.5E-03	2.0E-03	4.1E-03	6.1E-03	1.0E-02	2.2E-03	2.2E-03	3.1E-03	5.9E-03		
2	-	-	-	-	6.5E-03	1.5E-02	-	-	6.5E-03	7.6E-03		
3	3.6E-03	7.7E-03	1.1E-03	2.1E-03	3.1E-03	7.7E-03	-	-	3.4E-03	3.0E-03		
4	-	-	-	-	-	-	1.3E-03	1.6E-03	3.1E-03	3.2E-03		
5	4.0E-03	6.5E-03	1.1E-02	2.8E-02	-	-	3.1E-02	3.4E-02	-	-		
6	3.1E-03	7.0E-03	2.2E-03	4.5E-03	5.7E-03	1.1E-02	2.9E-02	3.1E-02	5.7E-01	9.0E-01		
7	4.3E-03	9.4E-03	1.9E-03	5.0E-03	3.9E-03	7.5E-03	2.4E-03	3.3E-03	3.9E-01	5.4E-01		
8	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
9	-	-	1.5E-03	2.6E-03	-	-	-	-	-	-		

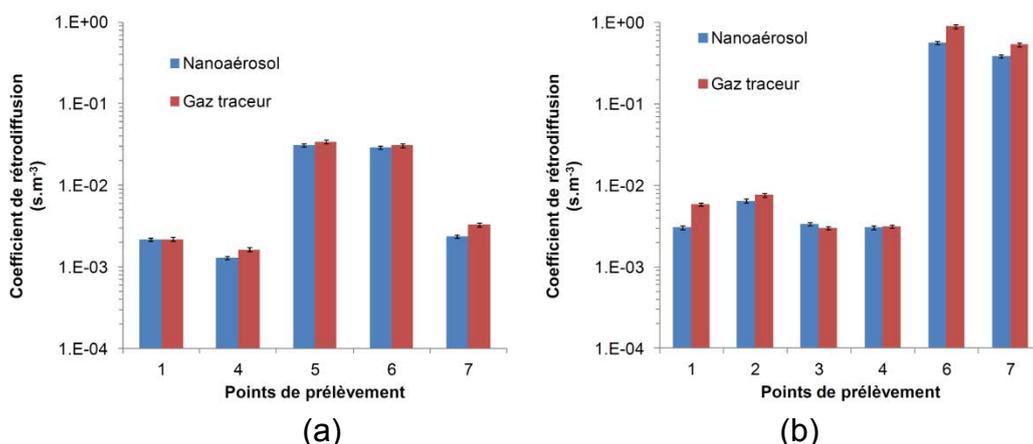


figure 2-39 : Coefficients de rétrodiffusion pour une hauteur de 0,6 m et une vitesse d'aspiration $v=0,4 \text{ m.s}^{-1}$ (a) et $v=1 \text{ m.s}^{-1}$ (b)

La figure 2-39 permet d'apprécier la répartition des vitesses d'air dans l'ouverture de la sorbonne. Cette cartographie est issue des mesures ponctuelles de vitesse effectuées en différents points de l'ouverture à l'aide d'un anémomètre

unidirectionnel à fil chaud. Elles offrent un renseignement qualitatif sur l'aspect des écoulements induits en ouverture. Ainsi, comme le fonctionnement de la sorbonne le laissait supposer, les vitesses les plus élevées sont observées en partie haute, puisque l'aspiration est placée dans la partie supérieure de l'enceinte. Les vitesses les plus faibles sont alors observées en partie basse de l'ouverture, endroit où l'on constate les plus importantes fuites de polluant.

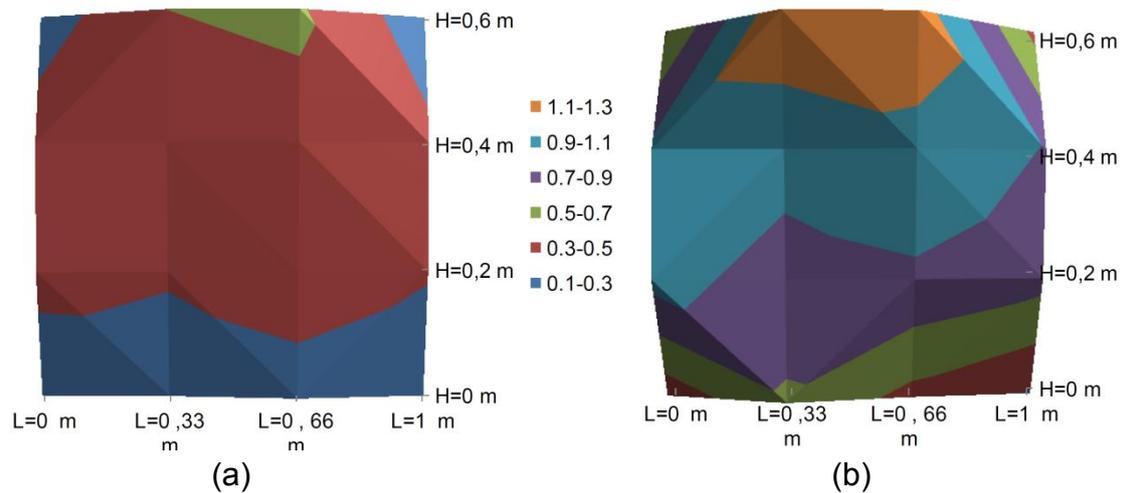


figure 2-40 : Répartition de la vitesse normale à l'ouverture pour une hauteur de 0,6 m et deux vitesses nominales : $v=0,4 \text{ m.s}^{-1}$ (a) et $v=1 \text{ m.s}^{-1}$ (b)

3. Corrélation entre les coefficients de rétrodiffusion gazeux et nanoparticulaires

Comme lors des mesures précédentes, l'utilisation du coefficient de rétrodiffusion comme indicateur du niveau de confinement nous permet de confronter directement les résultats obtenus pour les nanoparticules et pour le gaz traceur. Comme attendu, la rétrodiffusion nanoparticulaire est dans la totalité des cas, inférieure à celle obtenue pour le gaz. Les différentes situations étudiées ainsi que le nombre important de points évalués ne mettent pas en évidence un comportement spécifique des nanoparticules par rapport à celui du gaz.

L'ensemble de ces résultats nous permet de représenter l'évolution du coefficient de rétrodiffusion nanoparticulaire en fonction du coefficient de rétrodiffusion gazeux pour chaque hauteur d'ouverture testée. La rétrodiffusion des nanoparticules, dans notre cas, peut être exprimée en fonction de celle obtenue pour le gaz à partir d'une relation linéaire. Nous constatons ainsi que, dans les conditions expérimentales de notre étude, le niveau de confinement dynamique apporté par la sorbonne test pour les nanoparticules est près de deux fois supérieur à celui apporté pour le gaz.

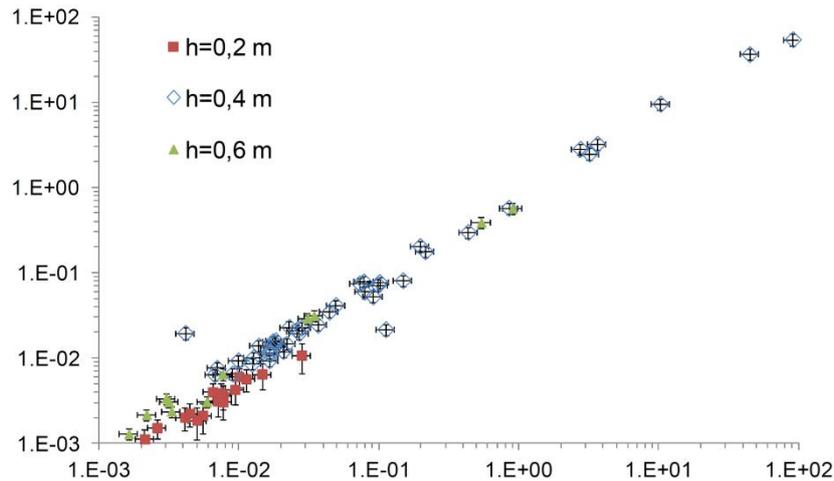


figure 2-41 : Corrélation de la rétrodiffusion gaz/nanoparticules

A l'aide d'outils de régression linéaire, il est possible d'établir une corrélation linéaire entre les coefficients de rétrodiffusion gazeux et nanoparticulaire. L'expression est alors la même que celle définie précédemment dans l'équation II.26. Les valeurs des coefficients de corrélations pour chaque hauteur d'ouverture sont alors rappelées dans le tableau suivant :

tableau 2-16 : Corrélation entre la rétrodiffusion du gaz et celle de l'aérosol de fluorescéine

Hauteur d'ouverture	coefficient a	Erreur de répétabilité (seuil à 95%)	coefficient de corrélation R^2
0,2 m	0,44	$\pm 0,16$	0,911
0,4 m	0,64	$\pm 0,21$	0,978
0,6 m	0,65	$\pm 0,11$	0,995

Cependant, ces résultats sont à nuancer ; en effet, même si nous avons pu observer que la distribution en nombre de l'aérosol de fluorescéine était nanométrique, cela n'est plus strictement vrai lorsque l'on examine la distribution en masse. Si l'on suppose que les particules sont sphériques, et que la masse volumique de l'uranine est constante, il est alors possible de tracer la distribution massique de l'aérosol à partir de la distribution granulométrique mesurée (figure 2-42). Le diamètre médian massique est situé au-delà de 110 nm, ce qui ne correspond plus exactement à la taille nanométrique si l'on se réfère aux définitions standards. Si l'on veut mettre en place ce type de mesure basée sur la détection de la masse, il est important de calibrer l'émission pour s'assurer d'être le plus proche de la gamme nanométrique. Cependant, si l'on se réfère aux résultats obtenus dans cette partie et dans la

précédente, on constate un comportement extrêmement voisin voire identique entre un aérosol ultrafin et un aérosol purement nanométrique.

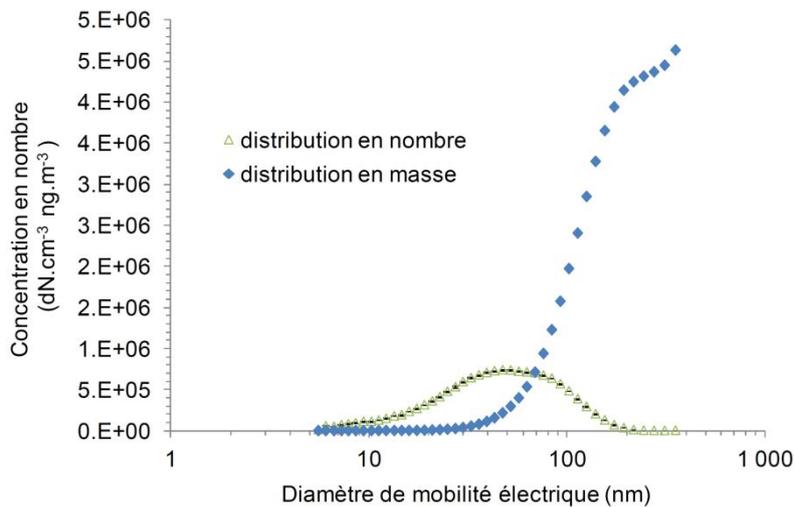


figure 2-42 : Distribution granulométrique et massique d'un aérosol de fluorescéine

4. Résultats complémentaires sur le dépôt

La méthode basée sur la technique de traçage aux particules de fluorescéine sodée permet d'accéder également à une donnée importante lorsque l'on s'intéresse à la contamination des surfaces, à savoir le dépôt.

Pour réaliser les mesures de dépôt, nous avons lessivé les parois après chaque situation testée. Nous obtenons alors le résidu déposé après deux heures de génération continue dans la sorbonne. Les médias utilisés pour le nettoyage subissent le même cycle de mesure fluorimétrique que les filtres définis plus haut (partie Mesure de la fluorescence de l'échantillon). On peut alors obtenir la masse déposée par surface. Quatre surfaces sont étudiées dont trois sont en aluminium (surface de travail, parois verticales du fond et de droite de la sorbonne) alors que la paroi verticale de gauche est en PVC. Les parois verticales gauche et droite ont une dimension de 0,66 m x 0,8 m, la surface de travail est de 0,66 m x 0,9 m et la paroi verticale du fond de 0,8 m x 0,9 m.

Les masses déposées pour l'ensemble des configurations testées sont présentées dans le tableau suivant :

tableau 2-17 : Dépôt sur chaque surface et pour chaque configuration

Configuration	masse déposée (g)				masse déposée par unité de surface (g.m ⁻²)			
	Surface de travail	Surface verticale fond	Surface verticale droite	Surface verticale gauche	Surface de travail	Surface verticale fond	Surface verticale droite	Surface verticale gauche
1	6.E-06	5.E-08	1.E-06	9.E-06	1.E-05	7.E-08	2.E-06	2.E-05
2	1.E-05	6.E-07	2.E-06	3.E-06	2.E-05	9.E-07	4.E-06	6.E-06
3	9.E-06	7.E-07	1.E-06	3.E-06	1.E-05	1.E-06	2.E-06	6.E-06
4	4.E-06	6.E-07	1.E-06	6.E-06	7.E-06	9.E-07	2.E-06	1.E-05
5	6.E-06	7.E-07	9.E-07	3.E-06	1.E-05	1.E-06	2.E-06	7.E-06
6	9.E-06	7.E-07	1.E-06	3.E-06	1.E-05	1.E-06	2.E-06	6.E-06
7	3.E-06	3.E-07	3.E-06	2.E-06	5.E-06	4.E-07	6.E-06	4.E-06
8	3.E-06	5.E-07	1.E-06	3.E-06	4.E-06	7.E-07	2.E-06	5.E-06
9	9.E-06	7.E-07	3.E-06	7.E-06	2.E-05	1.E-06	6.E-06	1.E-05
10	9.E-06	7.E-07	1.E-06	3.E-06	1.E-05	1.E-06	2.E-06	6.E-06
11	9.E-06	7.E-07	1.E-06	3.E-06	1.E-05	1.E-06	2.E-06	6.E-06
moyenne pourcentage du dépôt total	7.E-06 54%	6.E-07 4%	2.E-06 12%	4.E-06 31%	1.E-05	8.E-07	3.E-06	8.E-06

Le dépôt le plus important est observé sur la surface de travail, les plus grosses particules ayant un poids important dans la distribution massique sont celles qui sédimentent le plus. Le fait que le dépôt soit plus important sur la surface de gauche que sur la surface de droite est un fait surprenant. Au vu de la configuration de génération où l'émission est en direction de la partie droite, on s'attendait à ce que le dépôt soit plus important à droite. La nature même du matériau peut être une explication de ce phénomène ; en effet, les forces électrostatiques influençant significativement le dépôt, sont généralement plus importantes au voisinage d'une paroi en PVC qu'une paroi en aluminium. Ceci n'est qu'une supposition dans la mesure où les écoulements dans l'enceinte n'ont pas été caractérisés.

IV.3 Approche basée sur la mesure de la distribution granulométrique

Dans le tableau 2-18 sont reportées les conditions climatiques observées pendant l'ensemble des essais et détaillées en fonction de l'aérosol test. Il est important de réduire autant que possible les écarts de température, d'humidité et de pression atmosphérique car ce sont des grandeurs qui peuvent perturber les appareils de mesure, mais aussi modifier la morphologie des aérosols produits (notamment l'humidité sur les aérosols salins) ou encore altérer le fonctionnement des dispositifs de confinement (si l'on se réfère au retour d'expérience des bureaux de contrôle sur les essais de réception des sorbonnes de laboratoire).

tableau 2-18 : Conditions climatiques des essais

	Température moyenne °C	erreur IC 95%	Humidité relative %HR	erreur IC 95%	Pression atmosphérique hPa	erreur IC 95%
NaCl	20.6	± 0.4	43.5	± 1.5	976.6	± 3.0
Cuivre	20.5	± 0.3	58.4	± 1.3	955.7	± 3.0
Fluorescéine	21.6	± 0.4	60.2	± 1.7	963.5	± 3.9

1. Configuration de base

Les résultats obtenus pour les trois types d'aérosols et pour le gaz traceur sont décrits dans cette partie. Sur la figure 2-43 et la figure 2-44, les concentrations particulaires et gazeuse sont respectivement présentées pour les deux jours d'expérience, dans la situation de base. Pour la concentration en SF₆, il faut tenir compte du fait que le débit d'injection de SF₆ est variable selon les points observés. Nous avons alors introduit un facteur de correction qui correspond aux ratios du débit d'émission du SF₆ réel par un débit de référence afin que la comparaison des niveaux de concentration en SF₆ soit cohérente. Le débit de référence utilisé est la valeur la plus faible d'émission proposée dans le tableau 2-13, à savoir 0,0052 L.min⁻¹. La concentration gazeuse présentée n'est alors pas directement celle mesurée mais celle que l'on obtiendrait si le débit d'émission était celui de référence. Pour tous les aérocontaminants, les mesures de concentration n'ont été significatives que pour les trois points numérotés 3, 8 et 13 (figure 2-33). Ils sont tous positionnés dans l'axe de la source. La répartition spatiale, en termes de niveaux relatifs de concentration, est la même que ce soit pour la mesure particulaire ou gazeuse, et elle est directement liée aux écoulements d'air présents dans le PSM, associés à la configuration d'émission. Le plus haut niveau de concentration est donc observé au point 8, centré par rapport à la hauteur d'ouverture ; vient ensuite le point 13, placé au niveau du bord inférieur, et finalement le point 3, situé au niveau du bord supérieur de l'ouverture (cf. tableau 2-2).

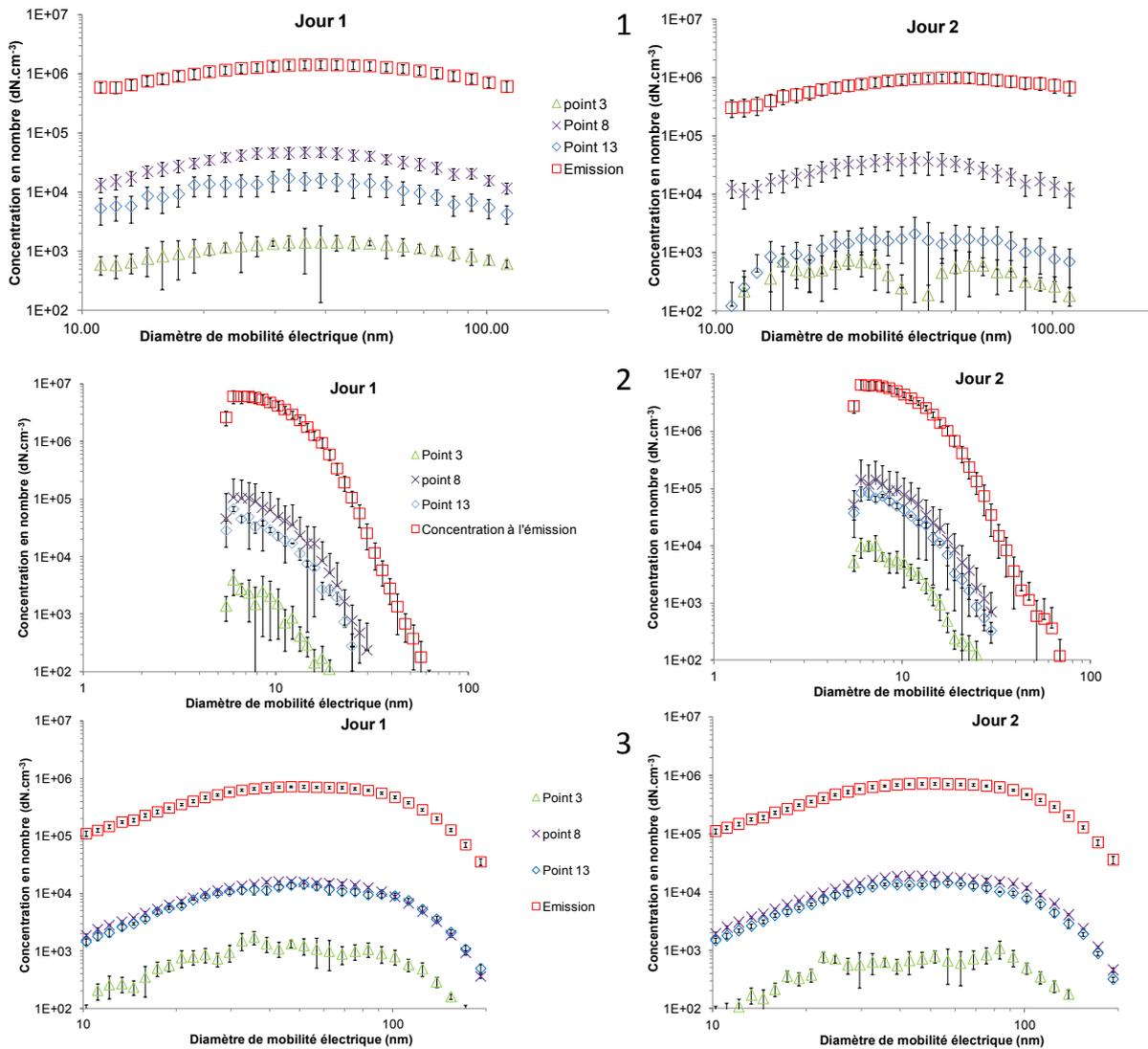


figure 2-43 : Distributions granulométriques des aérosols de NaCl (1), de Cu (2) et de fluorescéine (3) observées aux points de mesure et au niveau de l'émission pour les deux jours d'essai en configuration de base

Les mesures effectuées entre le jour 1 et le jour 2 ont donné des résultats comparables, sauf dans le cas du point 13 lors de l'émission de l'aérosol de NaCl (partie 1 de la figure 2-43 et de la figure 2-44). Les valeurs observées au point 13 présentent de très fortes disparités : il existe un facteur 10 entre les concentrations mesurées au cours des deux jours. On note de plus que l'évolution au cours du temps de la concentration en gaz (figure 2-44(1)) pour le point 13 indique justement l'apparition des fortes oscillations lors du deuxième jour. Cette variabilité temporelle est très certainement liée à des variations des conditions aérauliques du PSM non maîtrisées, puisque les instabilités concernent aussi bien les particules que le gaz. Les disparités sont observées également dans la situation testée en présence du mannequin (figure 2-45 (1)) mais pas dans la situation avec la plaque mobile (figure 13) ; cette dernière est source de perturbations aérauliques importantes qui peuvent potentiellement masquer les instabilités observées dans les deux autres situations.

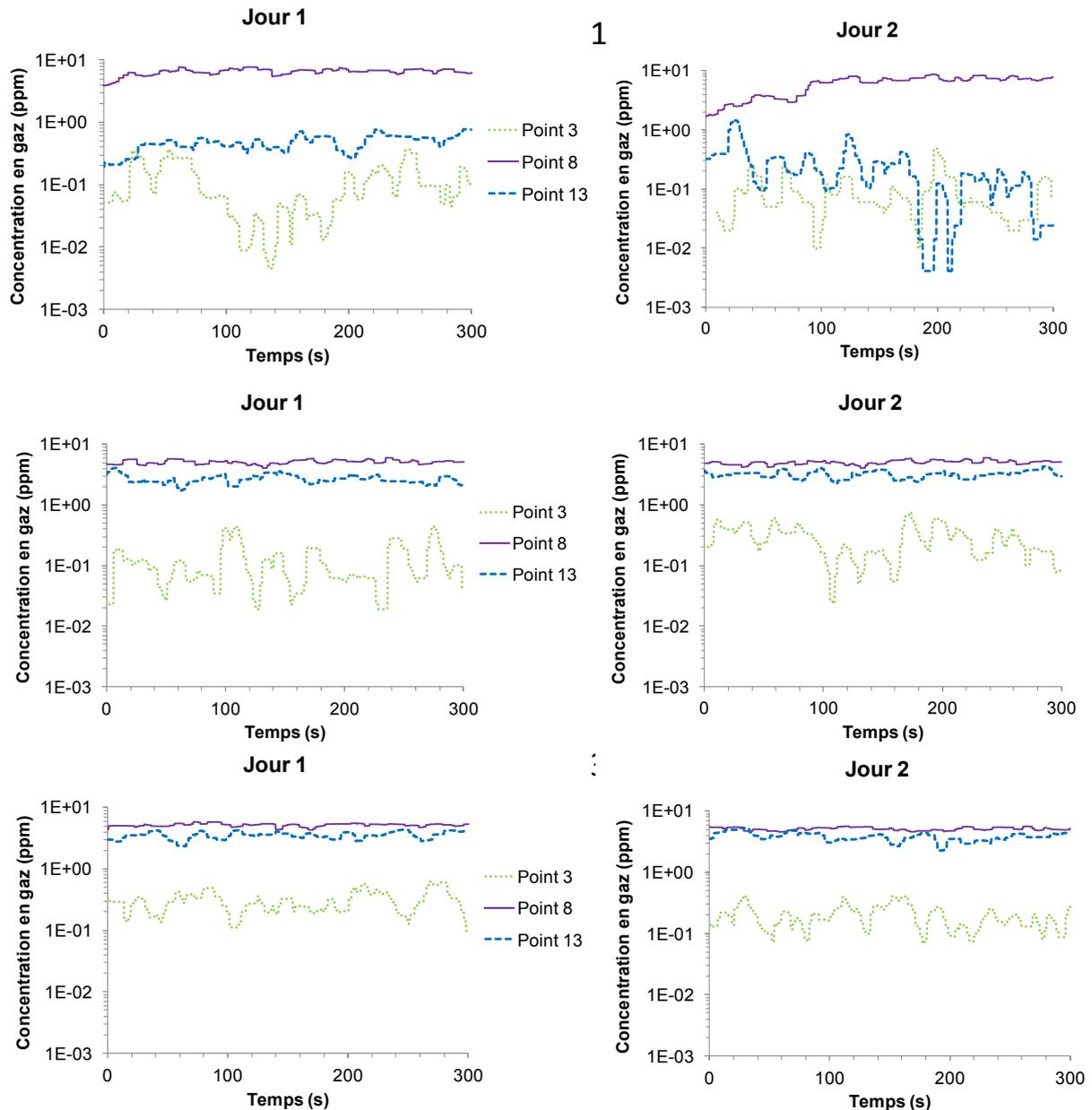


figure 2-44 : Evolution de la concentration gazeuse au cours du temps en différents points pour les deux jours d'essai en configuration de base ; le gaz est émis en simultanément aux aérosols de NaCl (1), de Cu (2) et de fluorescéine (3)

2. Configuration avec le mannequin

Les observations faites lors de l'ajout du mannequin sont très proches de celles correspondant à la situation de base (figure 2-45 et figure 2-46). De la même manière, les mesures sont significatives en trois points (3, 8 et 13), sauf que les niveaux de concentration atteints sont en moyenne supérieurs d'un facteur 1,5. A l'instar des résultats obtenus dans de nombreuses études précédentes (Prévoist *et al.*, 1998a ; Tseng, 2006), la présence d'un mannequin placé au niveau de l'ouverture d'une enceinte ventilée induit des modifications des champs de vitesses

d'air dans et autour de l'ouverture, et favorise ainsi les transferts d'aérocontaminant en dehors de l'enceinte.

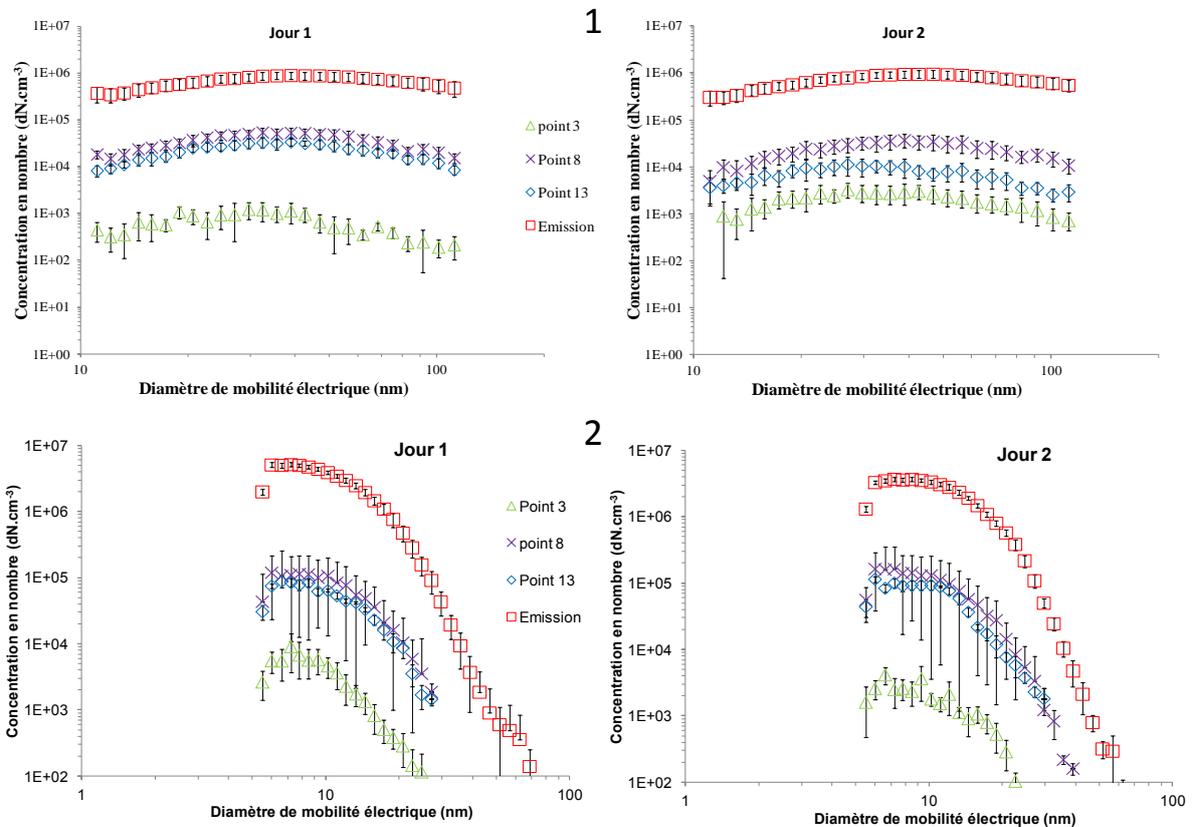


figure 2-45 : Distributions granulométriques des aérosols de NaCl (1) et de Cu (2) observées aux points de mesure et au niveau de l'émission pour les deux jours d'essai en configuration avec le mannequin

Comme expliqué précédemment, les résultats des concentrations mesurées entre le 1^{er} et le 2^{ème} jour sont reproductibles, excepté pour le point 13 lors de l'émission des particules de NaCl. Pour ce dernier point, les niveaux de concentrations moyennes observés entre les deux jours varient d'un facteur 6. Toutefois, cette variation concerne aussi bien le gaz que les particules, ce qui permet de conclure quant à l'origine aéraulique de la variation.

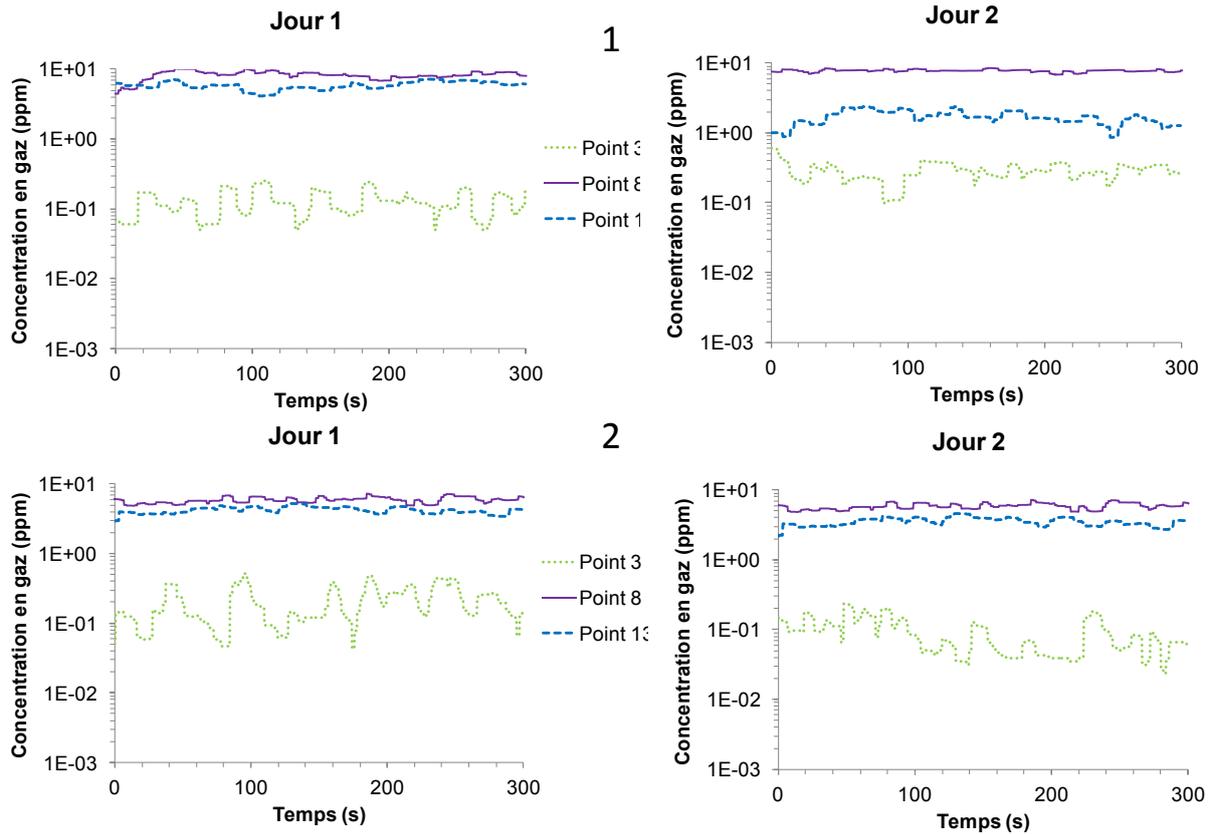


figure 2-46 : Evolution de la concentration gazeuse au cours du temps en différents points pour les deux jours d'essai en configuration avec le mannequin, gaz émis simultanément aux aérosols de NaCl (1) et de Cu (2)

3. Configuration avec la plaque mobile

Pour tous les types de polluants, l'effet induit par la plaque en mouvement est très significatif ; les concentrations mesurées en gaz et particules sont élevées pour l'ensemble de la cartographie étudiée. En d'autres termes, les particules et le gaz sont dispersés de manière importante dans toutes les directions du fait du déplacement de la plaque ; les concentrations les plus importantes sont toujours observées aux points 3, 8 et 13. L'intensité du signal détecté aux autres points est ensuite directement dépendante de leur distance par rapport à ces derniers points. Pour simplifier la lecture, seules les mesures des concentrations aux points 3, 8 et 13 sont présentées sur la figure 2-47 et sur la figure 2-48 mais la figure 2-49 et la figure 2-50 permettent de constater la dispersion des polluants à tous les points de mesure. Les résultats sont comparables d'un jour à l'autre, sauf pour ceux du point 3, dans le cas de l'émission de l'aérosol de NaCl. Il semblerait que les concentrations mesurées lors du 1^{er} jour aient été perturbées.

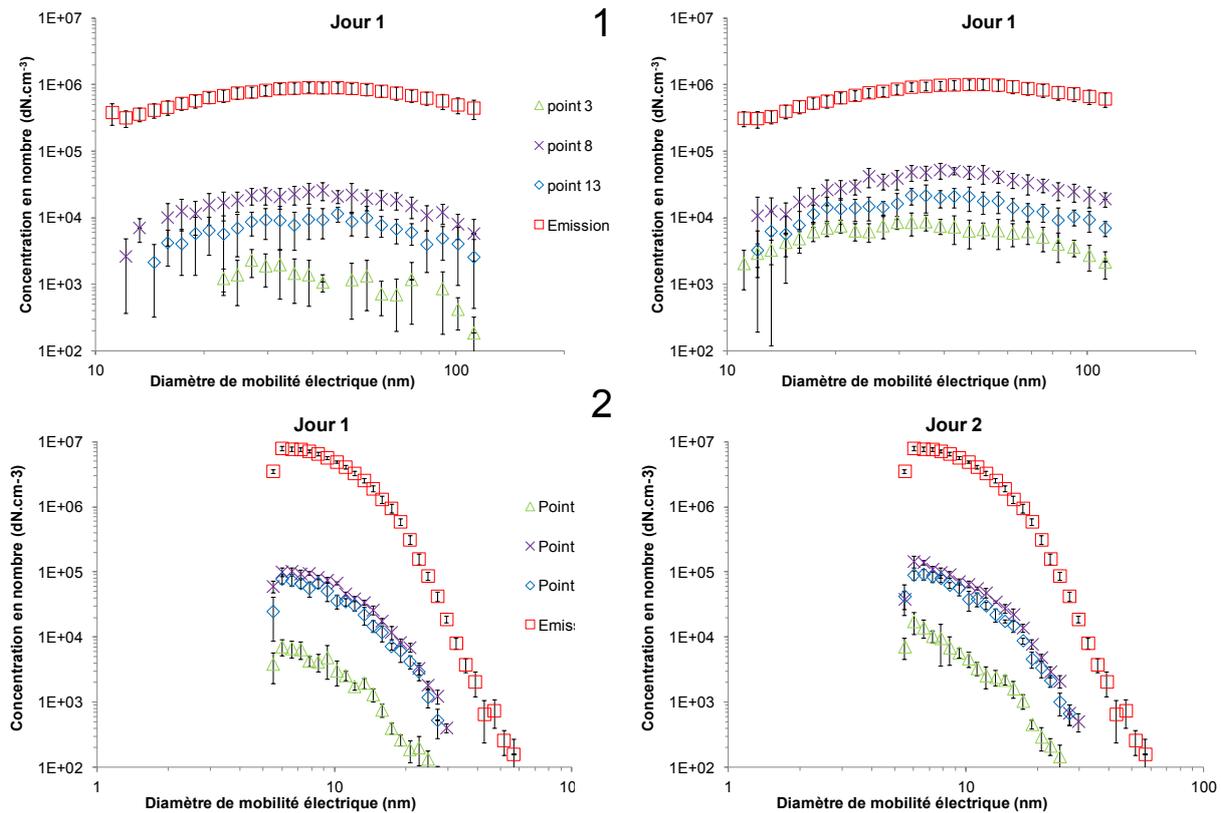


figure 2-47 : Distributions granulométriques des aérosols de NaCl (1) et de Cu (2) observées aux points de mesure 3, 8 et 13, au niveau de l'émission, pour les deux jours d'essai en configuration testée avec la plaque mobile

Il semblerait que la dissémination soit plus faible dans le cas de l'émission de l'aérosol de cuivre. En effet, si l'on observe l'évolution des concentrations en gaz sur la figure 2-48 ainsi que les cartographies globales de concentration en aérocontaminants (figure 2-49 et figure 2-50), on constate que les niveaux de fuites sont plus faibles. Ce constat sera confirmé lors du calcul des coefficients de rétrodiffusion pour cette configuration (tableau 2-19). Les coefficients de rétrodiffusion (gaz comme particules) sont 2 à 10 fois moindres dans le cas de l'émission de Cu en regard de la situation avec émission de NaCl.

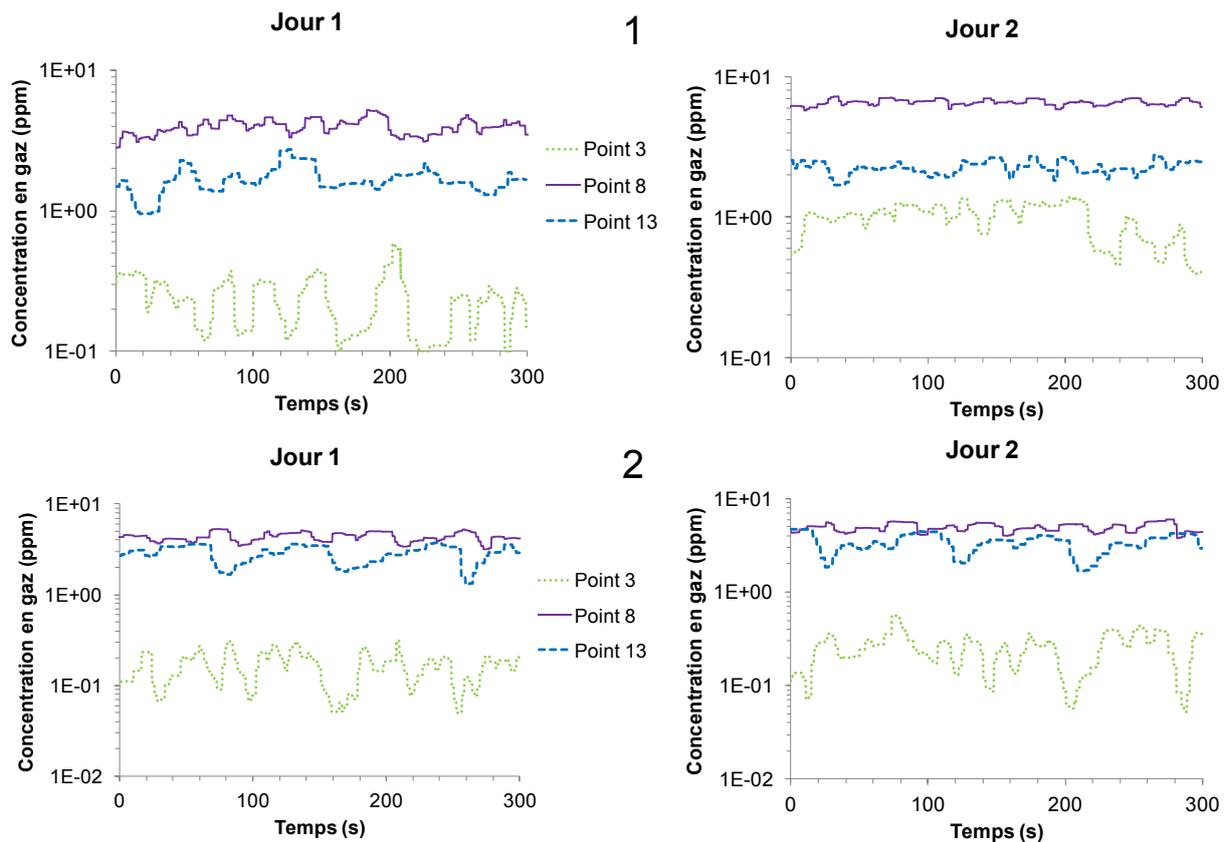


figure 2-48 : Evolution de la concentration gazeuse au cours du temps en différents points pour les deux jours d'essai en présence de la plaque mobile, le gaz étant émis simultanément avec les aérosols de NaCl (1) et de Cu (2)

La variation de fréquence du déplacement de la plaque devant l'enceinte permet d'expliquer cet écart relativement important. En effet, dans le cas du test avec une source de NaCl, la plaque mobile effectue des allers-retours permanents sur une période de 4 secondes environ, alors que dans le cas du test avec une source de Cu, cette même période est d'environ 60 secondes. Nous aurions souhaité avoir une période de 30 secondes pour l'ensemble des essais (telle que définie dans la norme relative aux sorbonnes) mais le système automatisé créé pour une précédente étude d'évaluation des sorbonnes, ne contenait plus ce programme de déplacement. Nous l'avons reprogrammé pour qu'il effectue d'abord des allers-retours sans arrêt, puis nous lui avons imposé un temps d'arrêt. Ces difficultés expérimentales n'empêchent toutefois pas de comparer le confinement d'un polluant gazeux et celui d'un polluant nanoparticulaire émis dans les mêmes conditions, ce qui constitue le principal objectif de cette campagne expérimentale.

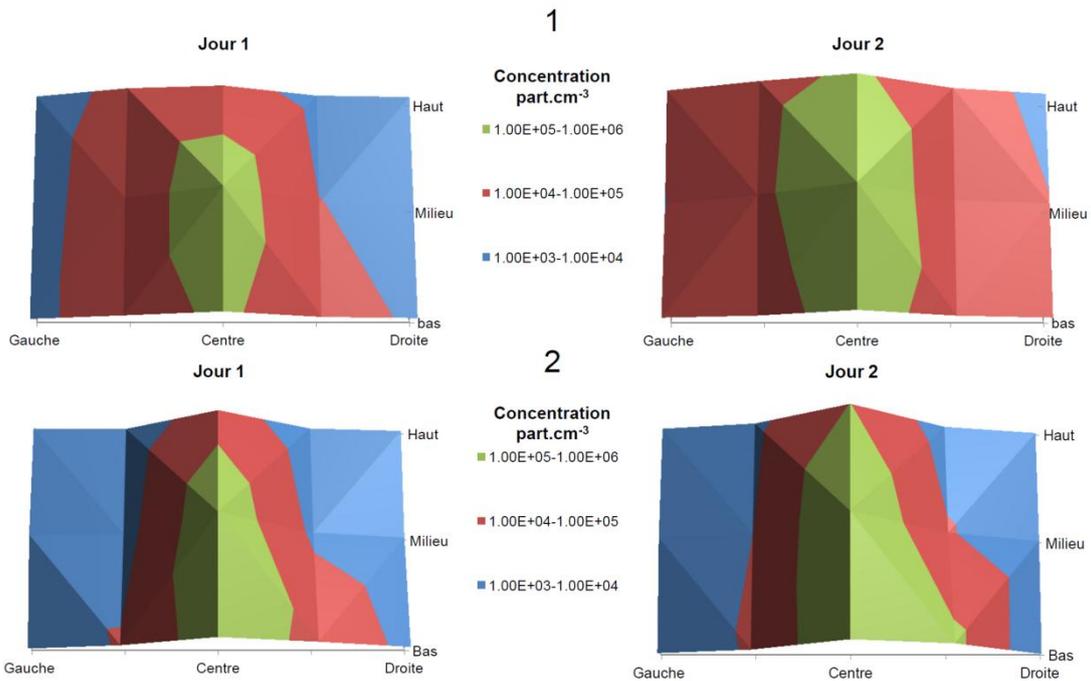


figure 2-49 : Cartographie des fuites de nanoparticules tracées à partir des concentrations mesurées en nombre aux 15 points pour le NaCl (1) et pour le Cu (2)

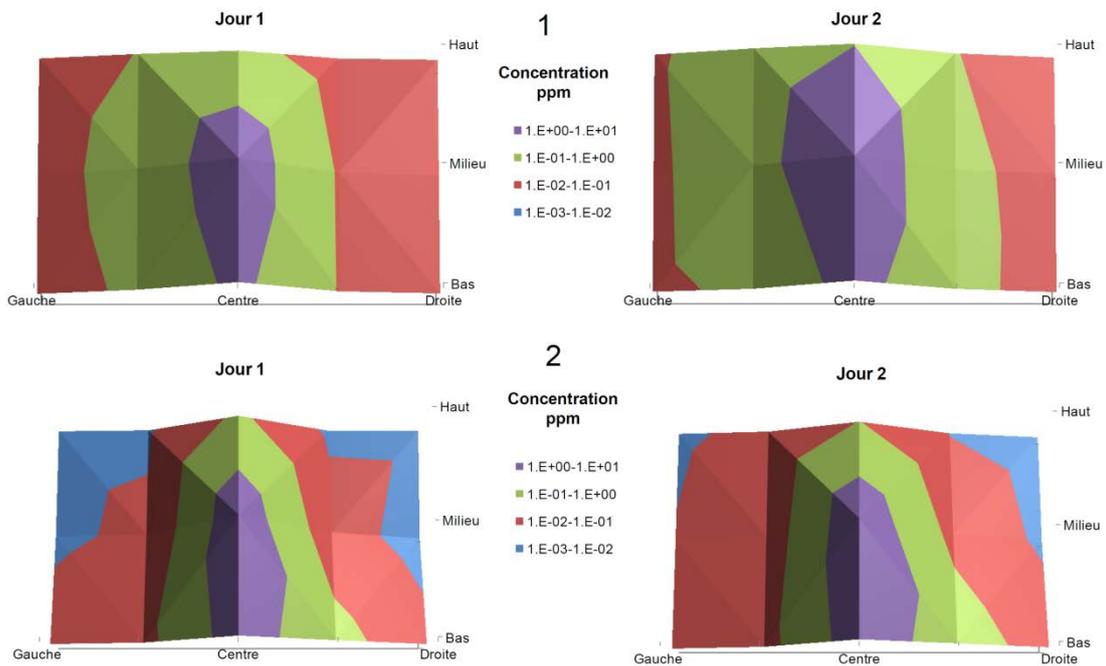


figure 2-50 : Cartographie des fuites de gaz tracées à partir des concentrations mesurées en ppm aux 15 points pour le cas du NaCl (1) et pour le cas du Cu (2)

Pour illustrer la différence de comportement des différents traceurs par rapport à la fréquence de déplacement de la plaque, on peut s'intéresser à l'évolution au cours du temps de la concentration gazeuse détectée au niveau des points excentrés par rapport à l'axe d'émission du polluant. En effet, dans les configurations précédentes

nous n'avons pas été en mesure de détecter dans ces zones, une quelconque fuite de polluant. Les concentrations observées ici sont donc directement induites par le mouvement de la plaque. A l'aide de la figure 2-51, on voit que dans le cas d'un aller-retour rapide, le niveau de concentration mesurée aux niveaux des points excentrés reste stable ; de plus, les écoulements n'ont pas le temps de se stabiliser entre deux passages successifs de la plaque mobile. Dans le cas d'un aller-retour lent, le constat est différent, on distingue des pics de concentration au niveau de ces mêmes points lorsque la plaque se déplace mais les perturbations ont le temps de disparaître avant un nouveau passage de la plaque. Le signal est donc nettement plus oscillant dans le deuxième cas.

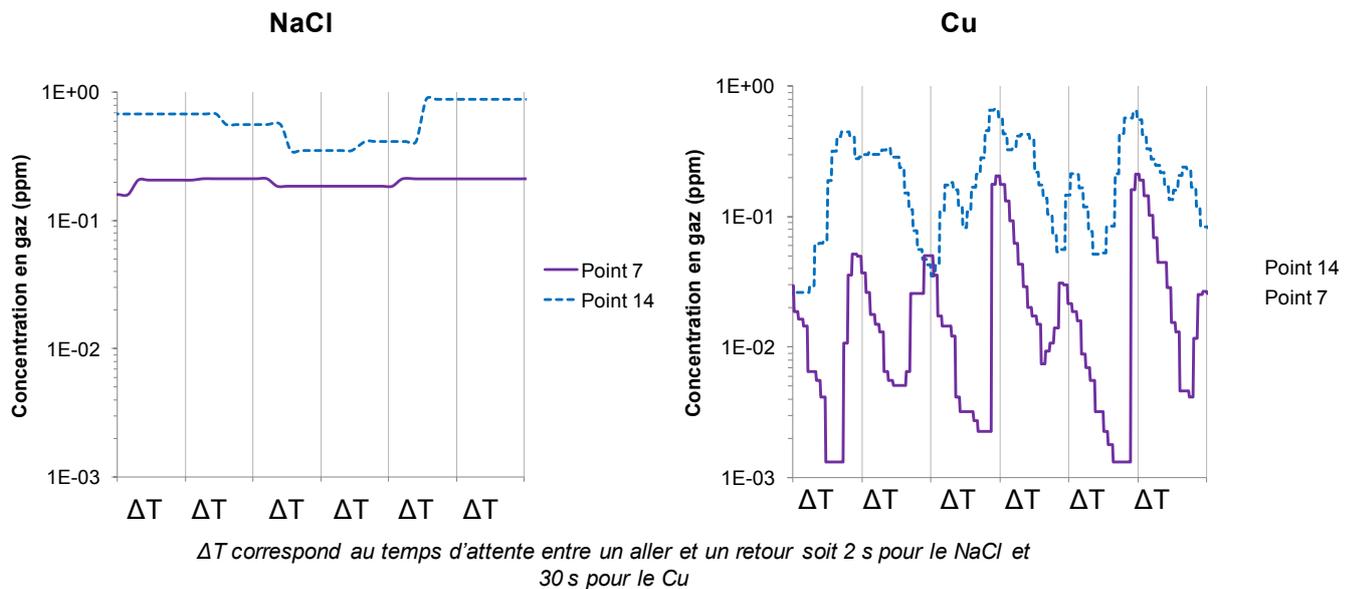


figure 2-51 : Evolution de la concentration en gaz pour les deux points 7 et 14 pendant trois allers-retours de la plaque

4. Corrélation entre les coefficients de rétrodiffusion gazeux et nanoparticulaires

Lorsque l'on s'attarde sur les résultats de la figure 2-43, de la figure 2-45 et de la figure 2-47, nous constatons que, globalement, les distributions granulométriques mesurées en chaque point de prélèvement présentent une forme similaire à la distribution granulométrique observée pour l'émission. En représentant les résultats de ces mêmes figures sous la forme de coefficients de rétrodiffusion (équation II.25) pour chaque classe de diamètre, on constaterait qu'aucune dépendance des grandeurs rétrodiffusion/diamètre n'apparaît. Les coefficients de rétrodiffusion calculés ci-après correspondent donc aux coefficients de rétrodiffusion moyennés sur l'ensemble des particules considérées ($d_p < 111,9$ nm pour les particules de NaCl et de fluorescéine et $d_p < 32,5$ nm pour les particules de Cu). Ce constat est vrai pour toutes les configurations testées. Les valeurs des coefficients de rétrodiffusion calculés pour chaque configuration et pour chaque polluant, moyennés sur les deux jours d'essais, sont présentées dans le tableau 2-3.

tableau 2-19 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion pour chaque configuration et pour chaque polluant moyennées sur les deux jours d'essais

Points de mesure	Configuration de base						Configuration avec le mannequin				Configuration avec la plaque mobile			
	NaCl		Cu		Fluorescéine		NaCl		Cu		NaCl		Cu	
	k_{nano} (s.m^{-3})	k_{gaz} (s.m^{-3})												
1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,7	0,8	0,1	0,1
2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2,7	3,4	0,2	0,2
3	0,9	1,3	0,9	2,3	1,6	3,2	2,6	2,7	1,26	3,51	7,1	7,8	1,7	2,6
4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,9	1,1	0,1	0,1
5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,5	0,5	0,0	0,1
6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,6	0,81	0,1	0,1
7	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	3,8	5,19	0,2	0,3
8	44,7	78,6	21,3	68,0	26,9	65,7	58,9	100,0	43,4	93,3	46,4	66,67	23,7	58,9
9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,3	1,5	0,21	0,5
10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,7	1,0	0,1	0,1
11	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,7	0,9	0,1	0,2
12	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2,5	3,21	0,3	0,5
13	8,2	16,2	11,2	31,04	20,6	46,5	29,2	46,1	28,9	53,2	19,5	24,8	15,4	39,6
14	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1,82	2,3	2,2	3,7
15	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0,9	1,2	0,1	0,3

- Signifie que le signal mesuré n'est pas exploitable car trop faible

L'utilisation du coefficient de rétrodiffusion comme indicateur du niveau de confinement permet de confronter directement les résultats obtenus pour les nanoparticules et pour le gaz traceur (tableau 2-19). Comme attendu, la rétrodiffusion nanoparticulaire est, dans la totalité des cas, inférieure à celle obtenue pour le gaz. Les différentes situations étudiées ainsi que le nombre important de points évalués ne mettent pas en évidence un comportement spécifique des nanoparticules par rapport à celui du gaz.

Pour la configuration avec la plaque mobile, pour chaque hauteur de mesure, l'intensité de rétrodiffusion la plus élevée se retrouve sur les points centraux. La rétrodiffusion des traceurs est répartie alors quasi-symétriquement autour de ces points, et les valeurs les plus faibles sont observées près des parois latérales droite et gauche. Les variations deviennent très importantes pour les points excentrés alors qu'elles restent de niveaux comparables à celles observées dans les deux premières situations pour les points 3, 8 et 13. Ceci indique que le phénomène instationnaire créé par le mouvement de la plaque est à l'origine de l'entraînement du polluant vers les points éloignés du centre.

L'ensemble de ces résultats permet de représenter l'évolution du coefficient de rétrodiffusion nanoparticulaire en fonction du coefficient de rétrodiffusion gazeux pour chaque aérosol test (figure 2-52). La rétrodiffusion des nanoparticules, dans notre cas, peut être exprimée en fonction de celle obtenue pour le gaz à partir d'une relation linéaire. Nous constatons ainsi que, dans les conditions expérimentales de notre étude, le niveau de confinement dynamique apporté par le PSM pour les nanoparticules est près de deux fois supérieur à celui apporté pour le gaz.

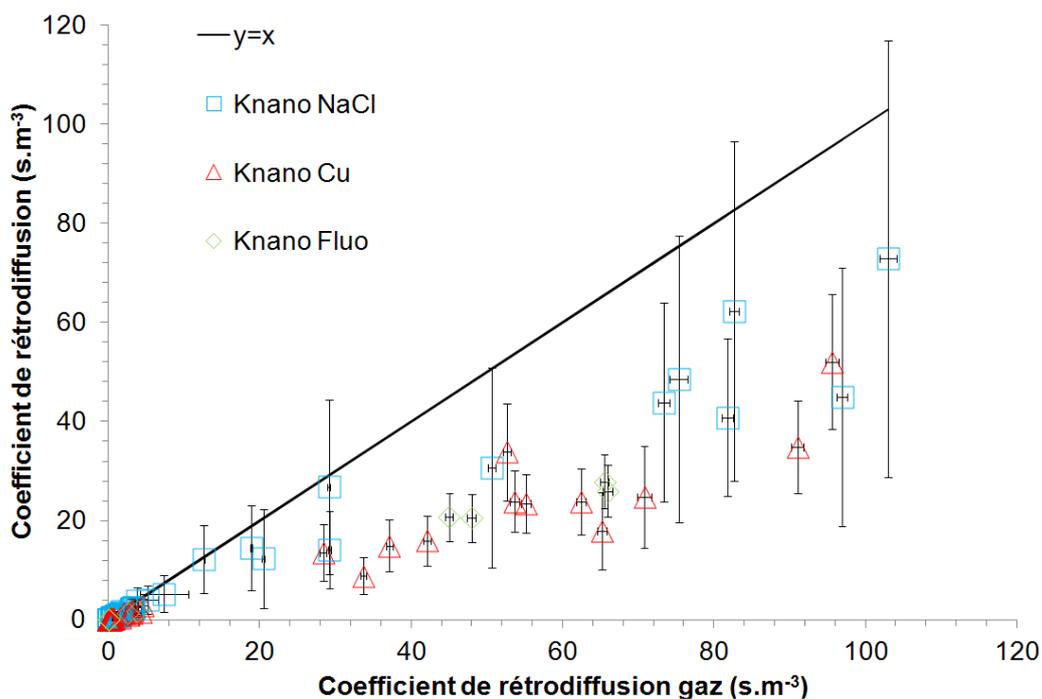


figure 2-52 : Corrélation de la rétrodiffusion gaz/nanoparticules

Il est donc possible d'établir une corrélation entre la rétrodiffusion du gaz et celle des différents aérosols tests. Le modèle de régression linéaire utilisé est présenté dans l'équation II.26 et les valeurs obtenues pour chaque aérosol testé sont résumées dans le tableau 2-20.

$$K_{\text{nano}} = a \cdot K_{\text{gaz}} \quad \text{équation II.26}$$

tableau 2-20 : Corrélation entre la rétrodiffusion du gaz et celle des différents aérosols

Aérosol	coefficient a	Erreur de répétabilité (seuil à 95%)	coefficient de corrélation R²
NaCl	0,62	± 0,29	0,962
Cuivre	0,42	± 0,16	0,940
Fluorescène	0,42	± 0,11	0,997

IV.4 Conclusions

Le principal objectif de l'étude consiste à mettre en exergue une éventuelle spécificité des nanoparticules lors de leur transfert au travers d'une barrière de confinement. Les grilles expérimentales mises en œuvre sont dimensionnées de manière à confronter le comportement d'un aérosol nanostructuré à celui d'un gaz traceur émis simultanément dans une sorbonne « maison » dans un cas et dans un PSM de type II dans l'autre cas pour diverses configurations.

En ce qui concerne le banc présent à l'IRSN, le principal objectif était d'évaluer une méthode d'essai basée sur une détection spécifique. Les points de prélèvement gazeux et nanoparticulaires situés en dehors de l'enceinte, couvrent une grande partie des bords de l'ouverture. Trois hauteurs d'ouverture distinctes ont été étudiées: 0,2 m, 0,4 m et 0,6 m. On a également fait varier la vitesse d'air et ajouté pour certaines configurations, un mannequin devant l'ouverture.

Nous avons nuancé les résultats en rappelant que malgré un diamètre médian en nombre nanométrique, le diamètre médian massique est quant à lui supérieur à 110 nm, ce qui peut poser problème dans certaines études lorsque les mesures sont basées sur la masse d'échantillon et non plus le nombre. Une étude complémentaire doit donc être réalisée sur la technique d'émission des nanoparticules de cette nature de façon à diminuer encore leur taille et à correctement calibrer cette dernière par rapport à une situation réelle d'émission.

La technique de mesure mise en place sur le banc présent à l'INRS est radicalement différente. Les niveaux de confinement sont obtenus par la mesure de la distribution granulométrique en nombre de l'aérosol en dehors de l'enceinte.

Ainsi, différentes modifications techniques ont dû être préalablement réalisées sur le dispositif PSM. De même, l'environnement expérimental, à savoir une salle propre, a dû être aménagé pour atteindre un empoussièrement naturel minimal de l'ambiance afin de maximiser le rapport signal sur bruit. Les points de prélèvement gazeux et nanoparticulaires situés en dehors de l'enceinte, couvrent une large partie de l'ouverture et des bords de celle-ci. Trois configurations distinctes ont été étudiées : la première situation, dite de base, correspond à des conditions idéales de fonctionnement, en l'absence de toutes perturbations extérieures. Deux conditions de fonctionnement plus réalistes ont également été étudiées : la présence d'un opérateur au poste de travail (simulée par un mannequin) et le déplacement de personnel devant celui-ci (simulé par une plaque mobile).

Les résultats obtenus, pour les deux méthodes de mesure explorées, corroborent les hypothèses formulées en introduction à savoir que le niveau de confinement atteint pour les nanoparticules est meilleur que pour le gaz : les coefficients de rétrodiffusion nanoparticulaires moyens sont deux fois moindres que ceux obtenus pour le gaz et ce, dans l'ensemble des situations étudiées.

Il faut cependant souligner que ce résultat n'est pas un gage de protection des opérateurs compte tenu des concentrations particulières détectées en dehors du PSM. En effet, notons qu'actuellement, il n'existe pas de valeurs limites d'expositions professionnelles spécifiquement établies en fonction de la taille des particules considérées. Mais, en se basant sur les résultats toxicologiques obtenus pour des nanoparticules présentant un risque sanitaire important (asbestose pour les nanotubes de carbone par exemple, Poland *et al.*, 2008), il est envisageable que la valeur limite d'exposition soit aussi faible que $0,1 \text{ part.cm}^{-3}$ dans certains cas. Cette valeur est inférieure de plusieurs ordres de grandeurs aux concentrations particulières obtenues dans cette étude et présentées sur la figure 2-43, la figure 2-45 et la figure 2-47. Ainsi, on peut se demander si ce type d'enceinte ventilée est en mesure de fournir une protection adaptée aux risques encourus dans la mesure où ces derniers sont mal évalués. Notons toutefois que les sources d'émission, choisies pour les besoins de cette étude, ne sont pas forcément représentatives d'une situation d'exploitation normale de l'enceinte mais plutôt d'une situation dégradée (sens et vitesse d'émission des polluants pénalisantes).

Partie numérique

Durant la première année de thèse, l'étude bibliographique des mécanismes de transport des nanoparticules a été entreprise dans le but d'accéder à un modèle numérique. Ce dernier a permis la simulation du dispositif expérimental présent à l'INRS, en parallèle aux travaux expérimentaux.

Chapitre I. Modélisation des écoulements diphasiques

Différentes méthodes sont envisageables lorsque l'on souhaite modéliser les écoulements diphasiques constitués d'une phase continue (ici l'air) et d'une phase dispersée (tel qu'un aérosol de nanoparticules) en Computational Fluid Dynamics (CFD ou mécanique des fluides numériques en français). Il existe différents couplages entre la résolution de la phase continue et celle de la phase dispersée comme suit :

- les méthodes Euler-Lagrange, où chaque particule est suivie individuellement (équation de la trajectoire pour chaque particule),
- les méthodes Euler-Euler, où la phase dispersée est traitée numériquement comme un second fluide. On écrit ainsi des équations de bilan en formulation eulérienne pour chaque phase.

tableau 3-1 : Diversité des modélisations rencontrées en CFD dans des travaux multiphasiques se rapportant aux particules peu inertielles (d'après Nerisson, 2009)

Référence	Méthode de simulation de la phase continue	Modélisation de la turbulence du fluide	Méthode de simulation de la phase dispersée	Granulométrie	Forces considérées	Rétroaction des particules sur la turbulence du fluide
Lu et Howarth, 1999	Formulation RANS	k-ε standard	lagrangien	$d_p = 1 \text{ à } 5 \text{ } \mu\text{m}$	gravité, traînée	oui
Zhao <i>et al.</i> , 2004-b	Formulation RANS	k-ε RNG	lagrangien	$d_p = 1 ; 2,5 ; 5 ; 10 \text{ } \mu\text{m}$	gravité, traînée, portance, brownienne	non
Bouilly <i>et al.</i> , 2005	Formulation LES	Modèle de Jiang et Chen	lagrangien	$d_p = 0,3 \text{ à } 15 \text{ } \mu\text{m}$	gravité, traînée	non
Zhao <i>et al.</i> , 2004-a	Formulation RANS	Modèle à 0 équation	eulérien : «drift-flux model»	$d_p = 1 ; 2,5 ; 5 ; 7,5 ; 10 \text{ } \mu\text{m}$	gravité, traînée	non
Holmberg et Li, 1998	Formulation RANS	k-ε standard	eulérien : «drift-flux model»	0,5 - 6 μm	gravité, traînée	non
Chen <i>et al.</i> , 2006 ¹	Formulation RANS	k-ε RNG	eulérien : «drift-flux model»	10 μm	gravité, traînée, brownienne	non
Lai <i>et al.</i> , 2008 ¹	Formulation RANS	k-ε RNG	eulérien : «drift-flux model»	10 μm	gravité, traînée, brownienne	non
Zhao <i>et al.</i> , 2008 ¹	Formulation RANS	k-ε RNG	lagrangien, eulérien («drift-flux model» et «mixture model»)	10 μm	gravité, traînée	non

¹ Ces travaux traitent la dispersion d'aérosols dans des enceintes ventilées de très faibles volumes ($< 1 \text{ m}^3$) et non des locaux.

Nerisson (2009) a répertorié de nombreux travaux ayant pour objectif la modélisation du transport d'aérosols peu inertiels dans un local. Il en a conclu que même si a priori les contextes des études sont proches, on rencontre d'un auteur à l'autre, une grande variété de modélisations (voir tableau 3-1).

Avant toute chose, nous présentons les différentes approches utilisées pour décrire la phase porteuse de l'écoulement.

I.1 Méthodes de résolution de la phase fluide

Les méthodes de résolution existantes pour la résolution des équations de Navier-Stokes en écoulement monophasique sont applicables à la résolution de ces mêmes équations de la phase porteuse en diphasique. On retrouve alors les méthodes RANS (Reynolds Averaged Navier Stokes), LES (Large Eddy Simulation : simulation des grandes échelles) et aussi DNS (Direct Numerical Simulation : simulation numérique directe). Nous ne nous intéresserons qu'à la description des méthodes RANS puisque les méthodes LES et DNS ne nous ont pas semblé être appropriées à la résolution de notre cas (méthodes trop coûteuses en regard de la méthode RANS).

Approche RANS

L'approche RANS est la plus répandue en simulations CFD. L'objectif de cette méthode est la résolution des équations moyennées de Navier-Stokes. La technique ne permet donc que la description des comportements moyens de l'écoulement.

A partir des équations de Navier-Stokes écrites avec les grandeurs instantanées, il est possible d'obtenir le système d'équations à résoudre. En faisant également la supposition que le fluide est incompressible et newtonien, les équations de Navier-Stokes sont alors les suivantes (la notation indicielle retenue est celle d'Einstein pour tout ce qui suit) :

$$\frac{\partial u_{f,i}}{\partial x_i} = 0 \quad \text{équation de continuité} \quad \text{équation III.1}$$

$$\left(\frac{\partial u_{f,i}}{\partial t} + u_{f,j} \frac{\partial u_{f,i}}{\partial x_j} \right) = F_i - \frac{\partial p}{\partial x_i} + \mu_f \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\partial u_{f,i}}{\partial x_j} + \frac{\partial u_{f,j}}{\partial x_i} \right) \quad \text{équation III.2}$$

équation de quantité de mouvement

avec $u_{f,i}$ la vitesse instantanée du fluide en x_i à l'instant t , ρ_f la masse volumique du fluide, F_i la somme des forces extérieures, p la pression du fluide et μ_f la viscosité dynamique du fluide.

Ces grandeurs sont l'assemblage d'une composante moyenne et d'une composante fluctuante. En généralisant pour une grandeur quelconque, cela s'écrit :

$$= \quad + \quad \text{équation III.3}$$

Avec la moyenne de Reynolds de sur une durée Δt .

$$= \frac{1}{\Delta t} \int_{t_0}^{t_0+\Delta t} (t) dt \quad \text{et} \quad \overline{\quad} = \frac{1}{\Delta t} \int_{t_0}^{t_0+\Delta t} (t) dt = 0 \quad \text{équation III.4}$$

Dans notre cas, on aura $u_{f,i} = U_{f,i} + u_i$ et $p = P + p$.

En appliquant la moyenne de Reynolds et en prenant en compte que cette même moyenne appliquée au terme fluctuant est nulle (équation III.4), les équations de Navier-stokes sont réécrites de la manière suivante :

$$\frac{\partial U_{f,i}}{\partial x_i} = 0 \quad \text{équation de continuité moyennée} \quad \text{équation III.5}$$

$$\left(\frac{\partial U_{f,i}}{\partial t} + U_{f,j} \frac{\partial U_{f,i}}{\partial x_j} \right) = F_i - \frac{\partial P}{\partial x_i} + \nu_f \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\partial U_{f,i}}{\partial x_j} \right) - \frac{\partial}{\partial x_j} (\overline{u_i u_j}) \quad \text{équation III.6}$$

équation de quantité de mouvement moyennée

La turbulence de l'écoulement est caractérisée par les termes $\overline{u_i u_j}$, appelés tensions de Reynolds.

L'utilisation d'une telle méthode ne permet que de simuler les grandeurs moyennes de l'écoulement (vitesses, pressions, ...). Il est également important de choisir un modèle de fermeture des équations pour modéliser correctement les tensions de Reynolds. Il existe pour cela de nombreux modèles de turbulence de différents ordres (méthode k- ϵ du 1^{er} ordre très répandue pour les écoulements d'air dans les locaux ou méthode de résolution des tenseurs de Reynolds (RSM) du 2^{ème} ordre moins répandue).

I.2 Méthodes de résolution de la phase particulaire

Dans le domaine numérique, il existe deux principales façons de simuler une phase particulaire, l'approche lagrangienne et l'approche eulérienne. Dans une approche lagrangienne, la phase fluide (air) est considérée comme une phase continue et la trajectoire des particules dans l'écoulement est prédite à partir de la somme des forces s'exerçant ces particules. En simulant les trajectoires d'une multitude de particules, un écoulement ensemencé de particules peut être simulé et des informations quant aux dépôts peuvent être collectées. L'approche eulérienne considère les particules et le fluide comme deux phases continues mais distinctes. On ne suit pas la trajectoire d'une particule mais le comportement d'un nuage de particules au travers du suivi de la concentration moyennée en volume et de la résolution des équations de conservation pour la phase particulaire. Ces deux approches nécessitent la connaissance du champ de turbulence de l'écoulement et

sont applicables pour des particules solides ou liquides se déposant dans un conduit. En général, les simulations lagrangiennes demandent moins de modèle conceptuel et intègrent mieux la physique fondamentale régissant le mouvement particulaire, mais avec des temps de calcul souvent très élevés.

I.3 Modélisation du transport des nanoparticules

La thèse de Nerisson (2009) a permis de mettre en avant que, pour la simulation du transport de particules ultrafines, les approches lagrangiennes sont plus complexes à mettre en œuvre, malgré une implémentation simple de la condition explicite de dépôt en paroi dans un code de calcul. De plus, les temps de calcul peuvent devenir excessivement longs en approche lagrangienne du fait du très grand nombre de particules nécessaires pour obtenir une consistance au niveau statistique (échantillon représentatif de la population totale) et du fait de la décroissance du temps de réponse des particules avec leurs tailles, ce qui induit une diminution du pas de temps d'intégration et donc un accroissement des temps de calcul. La simulation lagrangienne paraît alors plus adaptée au cas mettant en œuvre des particules plus inertielles. Les méthodes eulériennes présentent l'avantage d'un temps de calcul plus réduit mais sont d'un développement théorique plus complexe. Le modèle qui nous apparaît comme étant le plus pertinent est le modèle eulérien proposé par Zaichik *et al.* (2010) nommé Diffusion-Inertia Model (DIM). Ce modèle rend compte de la manière dont le transport de la concentration de particules faiblement inertielles diffère de celui d'un scalaire purement passif (équation III.7).

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\underbrace{U_{f,i}}_1 + \underbrace{\tau_p g_i}_2 - \underbrace{\tau_p \left(\frac{\partial U_{f,i}}{\partial t} + U_{f,k} \frac{\partial U_{f,i}}{\partial x_k} \right)}_3 - \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_k} \left(D_B \delta_{ik} + \frac{\Omega_{fp}}{1+\Omega_{fp}} D_{p,ik}^t \right)}_4 \right] C \quad \text{équation III.7}$$

$$= \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\underbrace{\left(D_B \delta_{ik} + D_{p,ik}^t \right) \frac{\partial c}{\partial x_k}}_5 \right]$$

où $\tau_p = \frac{\rho_p d_p^2 C_c}{18 \rho_f}$ est le temps de relaxation des particules, D_B est le coefficient de diffusion brownienne, $D_{p,ik}^t$ le tenseur de diffusion turbulente des particules, $U_{f,i}$ la vitesse du fluide, g la constante d'accélération gravitationnelle.

Les différents effets pris en considération dans cette équation sont les suivants :

1. Effet d'entraînement par la vitesse moyenne du fluide porteur.
2. Effet de la gravité (vitesse de sédimentation).
3. Effet de l'accélération du fluide.
4. Effet de la turbophorèse et de la diffusionphorèse.
5. Effet de la dispersion par agitation turbulente des particules et diffusion brownienne.

Dans le cas de notre étude, de nombreux phénomènes peuvent encore être négligés (inertie, interactions particules-particules, interactions particules-turbulence du fluide) du fait des propriétés intrinsèques des nanoparticules (faible inertie), mais aussi des conditions expérimentales (faible concentration volumique de particules). Dans ces conditions, le phénomène ayant le plus d'influence sur le comportement des particules, mis à part le transport par l'écoulement fluide, est le dépôt en proche paroi dû aux diffusions brownienne et turbulente. L'équation de transport se réduit donc à l'équation suivante :

$$U_{f,i} \frac{\partial C}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[(D_B + D_{p,ik}^t) \frac{\partial C}{\partial x_k} \right] \quad \text{équation III.8}$$

I.4 Modélisation du dépôt des nanoparticules

Dans de nombreux travaux expérimentaux, les auteurs se sont intéressés au dépôt de particules en paroi. A l'aide d'une géométrie simple (conduit vertical ou horizontal en général), les dispositifs expérimentaux mis en place permettent d'évaluer le dépôt d'aérosols en paroi. Les techniques de génération des aérosols, mais aussi les modes de détection sont variés selon les études. Plusieurs études relativement anciennes servent de référence et sont couramment citées dans des études actuelles ; il s'agit notamment d'études qui traitent du dépôt en écoulement turbulent dans un conduit vertical (Friedlander et Johnstone, 1957 ; Wells et Chamberlain, 1967 ; Liu et Agarwall, 1974). Certains auteurs établissent des relations à partir des résultats permettant d'évaluer la quantité d'aérosols déposés, pour des situations similaires (Friedlander et Johnstone, 1957 ; Liu et Agarwal, 1974). D'autres établissent des corrélations pour valider des résultats antérieurs ou les corriger (Wells et Chamberlain, 1967 ; Shimada *et al.*, 1989 ; Lee et Gieseke , 1994 ; Lai *et al.*, 2001). L'ensemble de ces travaux est effectué en régime turbulent, la turbulence du fluide étant reconnue comme étant l'un des principaux phénomènes à l'origine du dépôt des aérosols. Au fur et à mesure des avancées, les différents auteurs ont établi des relations pour la vitesse de dépôt, v_d étant la grandeur usuellement utilisée pour quantifier le dépôt, définie par l'équation III.9 :

$$v_d = \frac{\text{nombre de particules déposées par unité de surface de dépôt et par unité de temps}}{\text{concentration en particules au coeur du fluide}} \quad \text{équation III.9}$$

Friedlander et Johnstone (1957) puis Liu et Agarwall (1974) proposent des expressions pour la vitesse de dépôt, issues de leurs travaux expérimentaux, considérant que le phénomène de dépôt en paroi est dû à l'impaction turbulente des aérosols.

Certains expérimentateurs ont effectué des travaux où le dépôt n'est plus seulement dépendant du phénomène d'impaction, les diffusions brownienne et turbulente ayant

une influence sur le dépôt. Ainsi Wells et Chamberlain (1967) ont vérifié la corrélation couramment notée :

$$v_d^+ = 0,2 S_{cB}^{-2/3} Re^{-1/8} \quad \text{équation III.10}$$

avec $S_{cB} = \frac{v_f}{D_B}$ le nombre de Schmidt brownien ; $D_B = \frac{K_b \cdot T}{3\pi\mu_f d_p}$ le coefficient de diffusion brownienne; K_b la constante de Boltzmann.

Wood (1989) propose également une expression prenant en compte les effets cités ci-dessus mais aussi l'effet de sédimentation sur des parois horizontales :

$$v_{d^+} = 0,057 \cdot S_{cB}^{-\frac{2}{3}} + 4,5 \cdot 10^{-4} \tau_p^{+2} + \tau_p^+ g^+ \quad \text{équation III.11}$$

avec $g^+ = \frac{v_f}{u^*} g$

Les différents résultats obtenus sont présentés sur la figure 3-1 : ils sont plus ou moins cohérents entre eux selon les mécanismes prédominants de dépôt. Sur cette figure, plusieurs régimes de dépôt sont caractérisés en fonction de la valeur du temps de relaxation des particules τ_p^+ . On en distingue trois pour des parois verticales (Sippola et Nazaroff, 2002) :

- $\tau_p^+ < 0,1$ est ce que l'on nomme le régime de diffusion où la diffusion Brownienne est le phénomène qui permet aux particules de traverser la sous-couche visqueuse, après avoir été guidées jusque là par les turbulences du fluide porteur. En effet, du fait de leur faible inertie, ces particules vont suivre fidèlement l'écoulement jusque dans les plus petites échelles. Dans cette zone, la vitesse de dépôt diminue en fonction du temps de relaxation adimensionné des particules jusqu'à atteindre son minimum pour τ_p^+ proche de 0,1 ;
- $0,1 < \tau_p^+ < 10$ est appelé le régime de diffusion - impaction, le dépôt augmente sensiblement. Les particules correspondantes ne vont plus suivre aussi fidèlement l'écoulement que celles de la première zone du fait de leur taille. La diffusion va toujours avoir un rôle dans le dépôt mais certaines particules vont emmagasiner suffisamment d'énergie des tourbillons présents dans la zone tampon de l'écoulement fluide pour impacter une paroi et ce, avant d'avoir été affecté par la sous-couche visqueuse ;
- $\tau_p^+ > 10$ correspond à des particules inertielles d'où le nom de régime inertiel. La diffusion va entièrement disparaître et l'impaction turbulente va devenir le seul phénomène à l'origine du dépôt. Le mécanisme d'impaction est déclenché par des tourbillons de la zone logarithmique (la zone logarithmique en vitesse correspond à $y^+ > 30$) de l'écoulement fluide, où la turbulence est pleinement développée.

Il existe un très grand nombre de travaux expérimentaux et théoriques ayant étudié le dépôt en paroi. Les résultats et surtout les expressions de la vitesse de dépôt

adimensionnée issus de ces travaux vont servir de base au développement de modèles numériques.

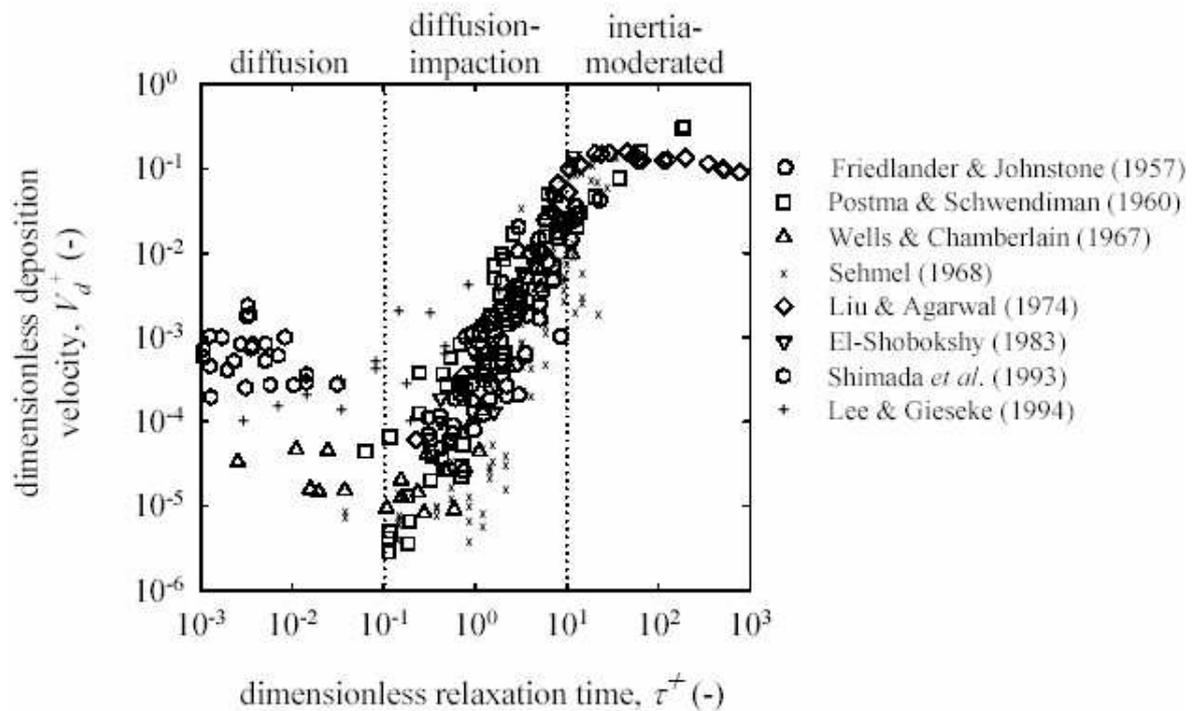


figure 3-1 : Vitesse de dépôt adimensionnée en fonction du temps de relaxation adimensionné des particules, pour des parois verticales (Tian et Ahmadi, 2006)

Pour le dépôt des particules en parois, il est nécessaire d'implémenter une condition limite. La condition limite qui est généralement retenue, concerne le flux de dépôt d'aérosols sur une paroi, soit $J = v_d C_{bulk}$ où C_{bulk} est la « concentration loin de la paroi ». Toutes les lois présentées plus tôt ou répertoriées dans la thèse de Nerisson (2009) sont basées sur cette valeur de C_{bulk} qui n'est ni claire ni unanime. En CFD, C_{bulk} est approchée par la valeur de la concentration calculée par le code dans la première maille de la paroi, cette valeur peut donc dépendre du maillage utilisé pour la simulation. De ce fait, pour s'affranchir de l'usage de C_{bulk} , une méthode d'estimation du flux de particules vers les parois a été développée dans cette thèse. Par analogie avec l'établissement des lois de parois pour la vitesse du fluide dans un écoulement turbulent, l'objectif est de déterminer un profil de concentration en aérosols dans la zone logarithmique de l'écoulement fluide, où la turbulence est pleinement établie. Deux conditions importantes sont vérifiées dans cette zone :

- le premier point de calcul est à une distance $y^+ = \frac{yu^*}{\nu_f} \gg 1$ (typiquement $y^+ > 30$), donc nettement loin de la paroi pour être à l'extérieur des zones laminaires et de transition ;
- ce même point appartient cependant à la couche limite de paroi, soit pour un écoulement en conduit $\frac{\kappa y}{D_H} \leq 1$, avec D_H , le diamètre hydraulique de la conduite (typiquement $\frac{\kappa y}{D_H} < 0,04$) et $\kappa = 0,41$ constante de Von Karman.

De cette manière, le flux de particules à la paroi pourra être écrit à partir de la connaissance du profil de C la concentration en particules et d'un couple de valeurs (y;C(y)), obtenu par le calcul dans le cœur de l'écoulement. Il s'agit donc de réécrire dans un premier temps l'équation III.7 dans la zone d'étude, nommée « couche limite dynamique » (CLD) :

$$\frac{\partial}{\partial y} \left[\left(\tau_p g - \frac{\partial}{\partial y} \left(D_B + \frac{f_p}{1 + f_p} D_{p,yy}^t \right) \right) C \right] = \frac{\partial}{\partial y} \left[(D_B + D_{p,yy}^t) \frac{\partial C}{\partial y} \right] \quad \text{équation III.12}$$

Pour obtenir l'équation III.13, l'écoulement est supposé stationnaire, la composante moyenne de la vitesse du fluide normale à la paroi $U_{f,y}$, est considérée nulle et seules les variations selon y sont prises en compte (direction normale à la paroi). L'équation III.12 est intégrée depuis une distance $y = \frac{d_p}{2}$ jusqu'à un point de l'écoulement situé à une distance y correspondant à un $y^+=1$, normale à la paroi. On peut ainsi écrire l'équation bilan suivante :

$$-(D_B + D_{p,yy}^t) \frac{\partial C}{\partial y} + \tau_p g_y C - C \frac{\partial}{\partial y} \left(D_B + \frac{f_p}{1 + f_p} D_{p,yy}^t \right) = J \quad \text{équation III.13}$$

Par convention, le flux de particules vers la paroi J est de signe négatif. Les particules sont admises comme déposées dès qu'elles ont atteint une paroi (pas d'effet de rebond), lorsque leur centre de masse est en $y = \frac{d_p}{2}$. Les grandeurs physiques J, D_B , τ_p , g_y , $D_{p,yy}^t$ et C doivent être connues pour déterminer le profil de concentration dans la couche limite. A cette liste doit être ajouté le diamètre des particules d_p qui peut avoir une influence sur le dépôt au travers de l'effet de taille. Les particules considérées sont en équilibre local avec la turbulence du fluide. Les profils dépendant de la turbulence du fluide peuvent être écrits en fonction de τ_p , u^* , f et y. Une analyse dimensionnelle conduit à écrire l'expression suivante pour le profil de concentration :

$$C(y^+) = \frac{-J}{u^*} q(y^+, S_{CB}, \tau_p^+, d_p^+, g^+) \quad \text{équation III.14}$$

avec $d_p^+ = \frac{d_p u^*}{\nu}$; $\tau_p^+ = \frac{\tau_p}{\rho u^*}$ et $g^+ = \frac{g_p}{u^*}$. q est une fonction sans dimension, indépendante de l'écoulement considéré, qu'il faut déterminer dans la zone logarithmique de l'écoulement fluide. Dans cette zone, les caractéristiques de la turbulence du fluide permettent d'écrire :

$$\frac{1}{2 \langle u_{f,i} u_{f,i} \rangle} = \frac{u^{*2}}{\sqrt{C}}; \quad D_{p,yy}^t = \frac{\kappa}{\tau_p u^*}; \quad \tau_p^+ = \frac{3 \kappa \sqrt{C}}{2 \tau_p u^*} y \quad \text{et} \quad \tau_p^+ = \frac{d_p^+}{y^+} \quad \text{avec} \quad \tau_p^+ \approx 5$$

(Pope, 2000)

En posant $C(y^+) = \frac{C(y) u^*}{-J}$ et en négligeant la turbophorèse, Nérisson montre que l'on peut écrire :

$$C(y^+) = \frac{-J}{u^*} \left[\frac{t}{K} \ln(y^+) + \lambda(S_{CB}, \tau_p^+, d_p^+) \right] \quad \text{équation III.15}$$

où $0,7 < t < 1$ est le nombre de Schmidt de la turbulence. $\lambda(S_{CB}, \tau_p^+, d_p^+)$ est une nouvelle fonction à déterminer. L'effet direct du diamètre des particules d_p est ici négligé (le diamètre intervenant quand même dans l'expression de S_{CB}) :

$$\lambda = \lambda(S_{CB}, \tau_p^+) \quad \text{équation III.16}$$

Identification de λ

Afin de déterminer λ , chacun des différents régimes de dépôt identifiés dans la littérature est considéré. Dans le cas limite du régime purement diffusif $\tau_p \ll 1$, λ ne dépend que du Schmidt brownien. Par analogie aux travaux de Lai et Nazaroff (2002) et au cas de la couche limite thermique, il est démontré que :

$$\lambda = \lambda(S_{CB}) = \lambda_0 S_{CB}^{-2/3} + \lambda_1 \quad \text{équation III.17}$$

Au contraire dans un régime plus inertiel, i.e $\tau_p \gg 1$, les particules ne seront plus influencées par la diffusion brownienne et ne dépendront plus que de la variable liée à l'inertie τ_p^+ . De la même manière que précédemment, on peut écrire dans ce cas limite :

$$\lambda = \lambda(\tau_p^+) = \frac{\omega}{\tau_p^{+2}} \quad \text{équation III.18}$$

Une loi universelle de λ valable dans tous les régimes peut alors être déduite à partir des deux cas limites précédemment évoqués. La plus simple étant de prendre une approximation du minimum de ces deux termes (équation III.17 et équation III.18) :

$$\lambda = \lambda(S_{CB}, \tau_p^+) = \left[\frac{S_{CB}^{-2/3}}{\lambda_0} + \frac{\omega}{\tau_p^{+2}} \right]^{-1} \quad \text{équation III.19}$$

Vitesse de dépôt

Soit la vitesse de dépôt locale définie au point d'ordonnée y :

$$v_d = -\frac{J}{C(y)} \quad \text{équation III.20}$$

et la valeur adimensionnée associée,

$$v_d^+ = -\frac{J}{C(y)u^*} \quad \text{équation III.21}$$

L'expression de l'équation III.15 permet de déduire :

$$v_d^+ = -\frac{J}{C(y)u^*} = \left[\frac{\sigma_t}{\kappa} \ln(y^+) + \lambda(S_{CB}, \tau_p^+, d_p^+) \right]^{-1} \quad \text{équation III.22}$$

Il est alors possible d'écrire le flux sortant en fonction de la distance à la paroi et des propriétés des particules.

Chapitre II. Choix de résolution numérique

II.1 Implantation dans Ansys Fluent

1. Modèles à planter dans le code CFD

Modèle de transport de concentrations d'a rosols

Utilisation de l'équation de transport d'un scalaire passif existante dans le code Fluent sous cette forme en régime stationnaire :

$$U_{f,i} \frac{\partial C}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[(D_{ik}) \frac{\partial C}{\partial x_k} \right] \quad \text{équation III.23}$$

Avec le tenseur de diffusion du scalaire défini par $D_{ik} = D_B + D_{p,ik}^t$

où $D_{p,ik}^t = D_{f,ik}^t = \tau_f^t \langle u_i' u_k' \rangle$

et $\tau_f^t = \frac{C_\mu k}{2 \sigma_t \varepsilon}$ avec un modèle de turbulence k- ε ($C_\mu = \quad$, et $\sigma_t = 1$).

Modèle de dépôt d'a rosols

Condition limite de flux en parois à modifier pour le scalaire :

$$J = C_0 u^* v_d^+ \quad \text{équation III.24}$$

avec C_0 la concentration calculée dans la première maille en proche paroi par le code CFD, u^* la valeur de la vitesse de frottement du fluide calculée également et v_d^+ la vitesse de dépôt adimensionnée définie dans l'équation III.22, qui devient pour une surface quelconque :

$$v_d^+ = \frac{\mathbf{g}^+ \cdot \mathbf{n}}{1 - \exp(\mathbf{g}^+ \cdot \mathbf{n} I_p)} \quad \text{équation III.25}$$

avec \mathbf{g}^+ le vecteur adimensionné d'accélération de la pesanteur et :

$$I_p(y^+) = \frac{\sigma_t}{\kappa} \ln(y^+) + \lambda(S_{CB}, \tau_p^+, d_p^+) \quad \text{équation III.26}$$

où y^+ désigne la distance adimensionnée au centre de la première maille de calcul. $\lambda(S_{CB}, \tau_p^+, d_p^+)$ est défini dans l'équation III.19. On peut par exemple prendre $n = 1$; $\lambda_0 = 17,5$; $\lambda_1 = \frac{2}{3}$ et $\omega = 2200$ (Wood, 1989).

2. Description du logiciel de CFD

Le logiciel de CFD retenu pour implémenter le modèle de transport et de dépôt est Ansys Fluent intégré à Workbench 13, un logiciel commercial. La résolution des équations discrétisées de Navier-Stokes est basée sur la méthode numérique des volumes finis. Tous les éléments nécessaires à la création et à la résolution du cas testé sont inclus dans Workbench. Il possède ses propres outils de dessin (Geometry), de maillage (Mesh) et de résolution (Fluent). L'interface permet de définir toutes les conditions limites courantes à fournir au solveur (vitesses, pressions, concentration...). Cependant, il est nécessaire de développer des routines utilisateurs (UDF pour User Define Function) pour toutes les entrées spécifiques (flux de particules et diffusion des scalaires). Le langage de programmation est le C.

3. Implantation

Cette étape est cruciale en ce qui concerne la modélisation du transport de l'aérosol de nanoparticules. En effet, il s'agit d'implanter dans Fluent les modèles physiques identifiés et décrits précisément ci-dessus. L'ajout du modèle de transport simplifié repose sur l'équation du transport d'un scalaire passif déjà présente dans le code. Il s'agit ici, de remplacer le coefficient de diffusion existant pour le scalaire passif par le tenseur de diffusion du modèle.

La prise en compte du dépôt se fait par l'ajout d'une condition limite de flux sortant de scalaire en proche parois. Pour obtenir les valeurs du flux, les vitesses de dépôts sont également calculées dans ce programme, selon les lois semi-empiriques définies le chapitre précédent.

Un seul programme, Modele_CLD.c contient l'ensemble de ces modifications ainsi que les propriétés des particules, les modèles de dépôt et les modèles de turbulence.

Chapitre III. Etude qualitative et quantitative de l'environnement expérimental

Il s'agit à présent, de simuler les transferts de nanoparticules au travers d'une barrière de confinement dynamique pour des conditions de fonctionnement comparables à celles définies dans la partie **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** et de confronter les résultats numériques aux résultats obtenus expérimentalement. Les résultats des simulations et la confrontation avec les résultats expérimentaux sont présentés dans ce chapitre.

III.1 Conditions de simulations

Les simulations de transfert des particules et du gaz traceur sont effectuées en régime permanent. Le nombre de scalaire correspond aux classes de diamètre de particules explorées par le SMPS. On retrouve donc 26 diamètres compris entre 5,5 nm et 111,9 nm. De plus, un scalaire supplémentaire est simulé, il correspond à la concentration en gaz traceur. Pour être confrontés aux données expérimentales, les résultats de simulations sont exprimés en coefficient de rétrodiffusion et les positions des prélèvements correspondent à la cartographie expérimentale.

1. Géométrie et maillage

Dans un premier temps, la géométrie utilisée (figure 3-2) prenait en compte tous les détails (PSM complet, conduits de ventilation, caisson de reprise) et la totalité du volume (zone latérale comprise). Le maillage utilisé est tétraédrique avec environ 3 millions de mailles. Cette première approche a permis la résolution de la phase fluide qui sert de base aux futures simulations.

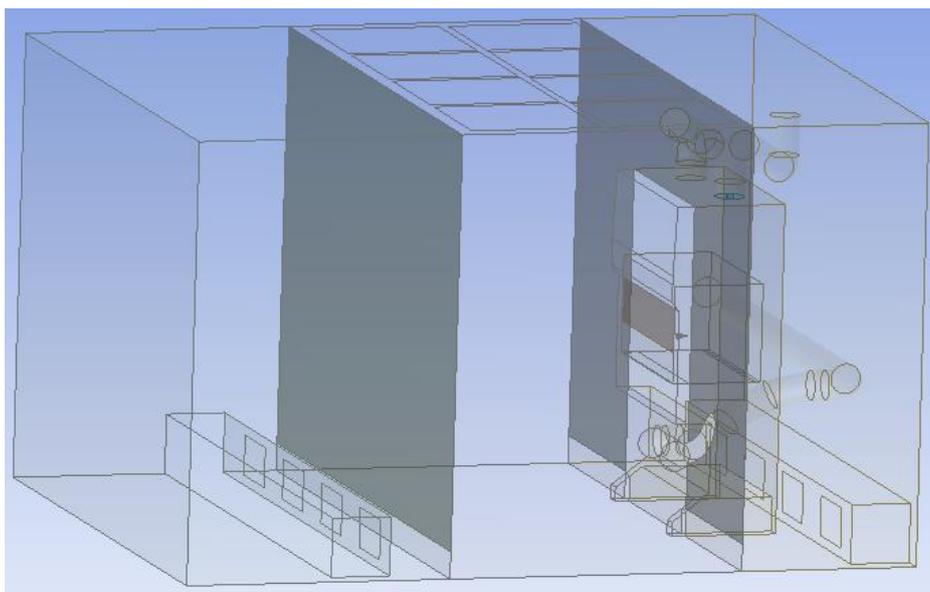


figure 3-2 : Géométrie complexe de l'environnement de travail

Par la suite, la géométrie a été simplifiée de façon à réduire le nombre de mailles et de supprimer les zones latérales (zones de très faibles vitesses). Les profils de vitesses sous les lamellés sont récupérés depuis la simulation précédente et sont ajoutés comme une condition limite dans le cas simplifié.

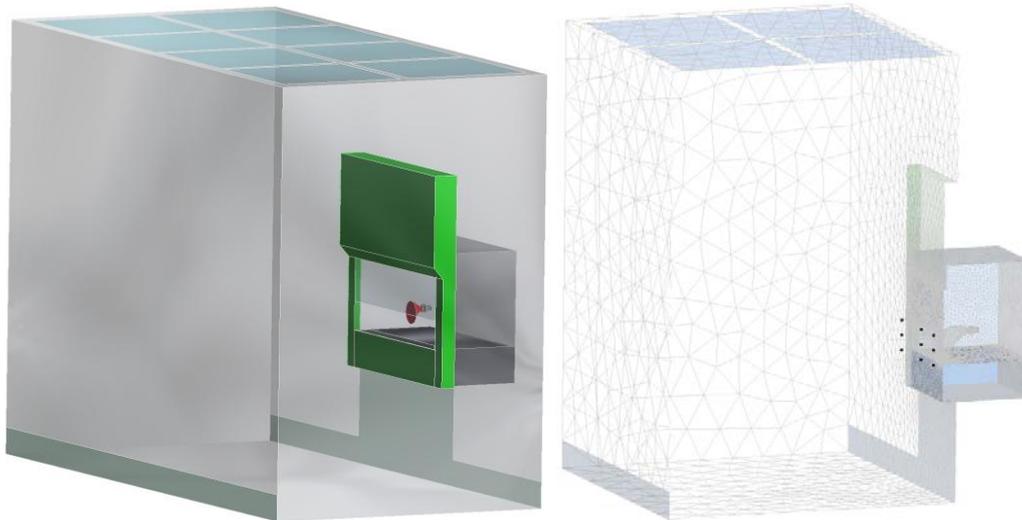


figure 3-3 : Géométrie simplifiée de l'environnement de travail et maillage

Le maillage utilisé est tétraédrique du fait de la géométrie de la buse d'injection ; il n'est en effet pas évident de découper la géométrie en blocs de façon à réaliser un maillage hexaédrique. Le nombre total de maille est relativement élevé, de l'ordre de 1 300 000 en raison du faible diamètre du cylindre d'injection (0,01 m), ce qui impose des mailles de l'ordre du millimètre dans cette zone. Dans l'enceinte, les mailles sont de l'ordre de 2,5 cm alors qu'elles atteignent 25 cm dans le reste de la salle propre.

2. Modèle de turbulence

Le modèle de turbulence retenu pour l'ensemble des simulations est le modèle K- ϵ réalisable (Shih *et al.*, 1995). Le schéma de résolution est du 1^{er} ordre (first order upwind). Les conditions limites que ce soit pour le soufflage ou l'extraction d'air ou pour l'injection de polluants, sont calculées à partir des diamètres hydrauliques et d'une valeur d'intensité turbulente.

$$k = \frac{3}{2} (I \cdot U_{in})^2 \quad \text{équation III.27}$$

$$\epsilon = \frac{C_\mu^{3/4} k^{3/2}}{l} \quad \text{équation III.28}$$

avec I l'intensité turbulente et $l = \frac{D_H}{3}$, où D_H est le diamètre hydraulique.

Les valeurs de K et ϵ sont présentées dans le tableau 3-2.

tableau 3-2 : Valeurs de κ et ε aux différentes conditions limites

Condition limite	Diamètre hydraulique D_H	Intensité turbulente	κ (m^2s^{-2})	ε (m^2s^{-3})
injection	0,01 m	5,4 %	0,35	4,90
extraction	0,41 m	4,1 %	$9,8 \cdot 10^{-3}$	$5,6 \cdot 10^{-4}$
plenum	0,88 m	5,4 %	$4,3 \cdot 10^{-5}$	$7,61 \cdot 10^{-8}$
flux descendant	0,78 m	4,6 %	$5,05 \cdot 10^{-4}$	$3,41 \cdot 10^{-6}$

La vitesse d'injection des aérocontaminants au niveau de l'entrée du cône est considérée comme homogène et est de l'ordre de 9 m.s^{-1} . Pour toutes les autres conditions limites, les profils de vitesses mesurés et détaillés dans la partie expérimentale sont interpolés sur les différentes entrées (les 8 plenums et le flux descendant dans l'enceinte).

III.2 Résultats numériques

1. Champs de vitesses moyennes

Le champ de vitesse obtenu numériquement dans l'ouverture du PSM est présenté sur la figure 3-4.

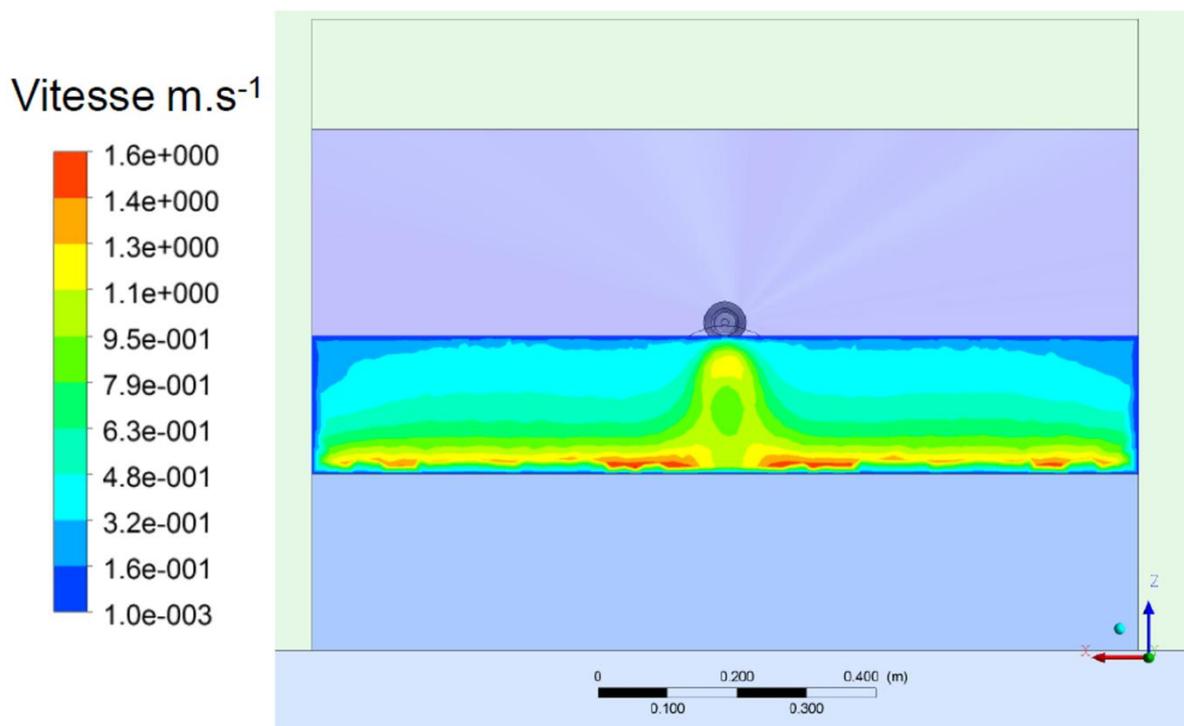


figure 3-4 : Intensités des vitesses moyennes dans l'ouverture du PSM

On distingue très nettement l'impact du jet sur le profil des vitesses. La zone rouge correspond aux vitesses positives donc dirigées vers l'extérieur de l'enceinte.

Lorsque l'on représente les vecteurs vitesses dans l'enceinte et autour de celle-ci, on voit qu'une grande partie de l'air injecté au travers de la buse arrive à s'échapper de l'enceinte (figure 3-5).

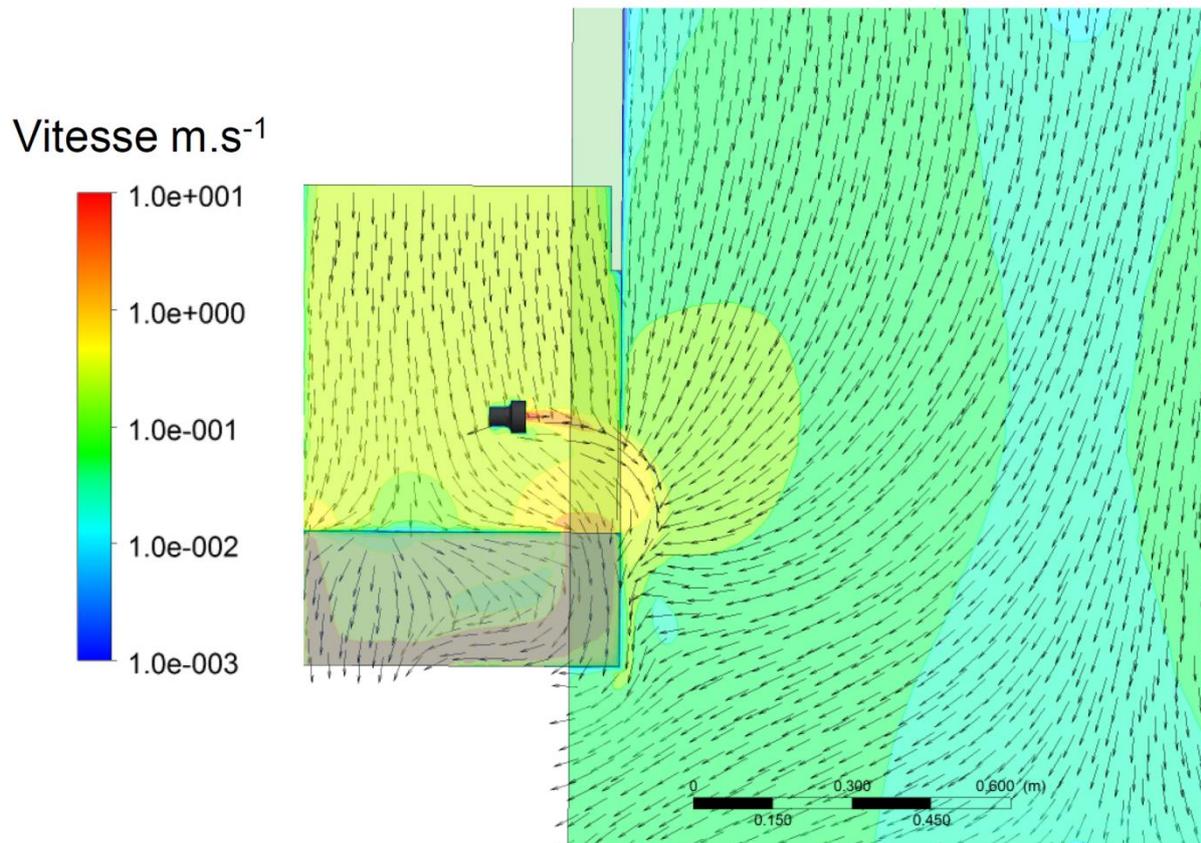


figure 3-5 : Cartographie vectorielle des vitesses, vue de côté du PSM

Sur ces deux dernières figures, on constate également que les vitesses négatives les plus importantes se trouvent en partie basse. Ce qui signifie que c'est dans cette partie que l'aspiration est la plus importante, ce qui concorde avec la position de la reprise d'air. On constate également que près des parois latérales, les vitesses sont relativement faibles.

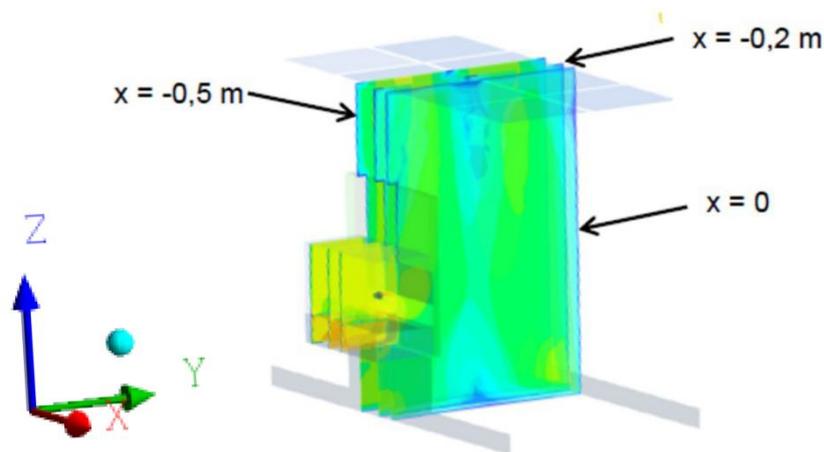


figure 3-6 : Implantation des plans $x=0$, $x=-0,2$ m et $x=-0,5$ m dans l'espace de travail

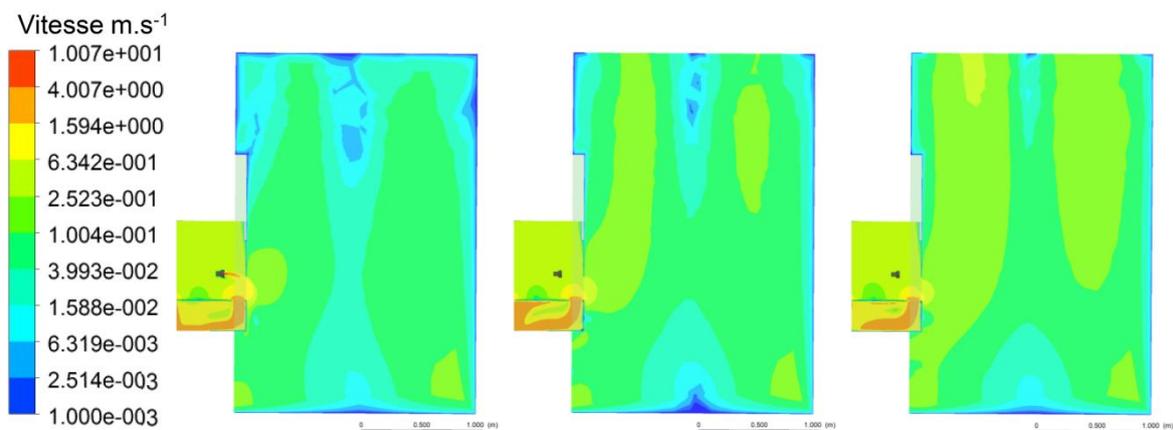


figure 3-7 : Champs de vitesses dans le volume complet pour $x=0$, $x=-0,2$ m et $x=-0,5$ m ($x=0$ étant l'axe du jet ou le milieu de la salle blanche dans le sens de la profondeur)

Sur la figure 3-7, trois plans différents (figure 3-6) ont servi de support au tracé du profil de vitesses. On se rend compte que la distribution des vitesses dans la salle blanche n'est pas parfaitement homogène. En effet, pour le plan $x=0$ les vitesses descendantes sont plus faibles car on se trouve sur le bord d'un plenum et plus on se déplace sur l'axe x et plus la vitesse descendante est importante car on se rapproche du centre d'un plenum. On constate également que l'impact du jet sur les écoulements dans le PSM est encore visible lorsque l'on se décale de 0,5 m par rapport au centre de l'émission.

2. Simulation du transfert du nanoaérosol et du gaz traceur

Les valeurs des concentrations sont comprises entre 0 et 1 car nous simulons l'évolution de la concentration adimensionnée $C^* = \frac{C}{C_0}$ avec C_0 la concentration initiale telle que $C^* = 1$ au niveau de l'injection des polluants. Grâce à cela, il est possible de comparer les résultats obtenus pour les différents polluants mais aussi pour chaque diamètre bien que les intensités de source obtenues expérimentalement soient différentes. Par la suite, dès que nous parlerons de concentration, il s'agira de C^* .

La figure 3-8 et la figure 3-9 présentent les champs de concentrations pour quatre polluants, respectivement dans les plans $x=0$ et dans le plan de mesure (en retrait de 0,05 m par rapport à l'ouverture du PSM). Les quatre scalaires présentés correspondent aux particules de diamètre 11,1 nm (diamètre minimal mesuré), de diamètre 42,6 nm (diamètre médian de la distribution granulométrique en nombre), de diamètre 111,9 nm (diamètre maximal mesuré) et un gaz traceur (SF_6). A Alors que les phénomènes de diffusion des particules modélisées semble identiques, on constate une légère différence dans la diffusion du gaz. On distingue nettement que le gaz se diffuse de manière moins étendue que les particules. Les 15 points de mesure ont également été représentés sur ces deux figures (sphères noires).

Sur la figure suivante, les positions de la source et des points de mesure expérimentaux définis dans le chapitre II, sont rappelées :

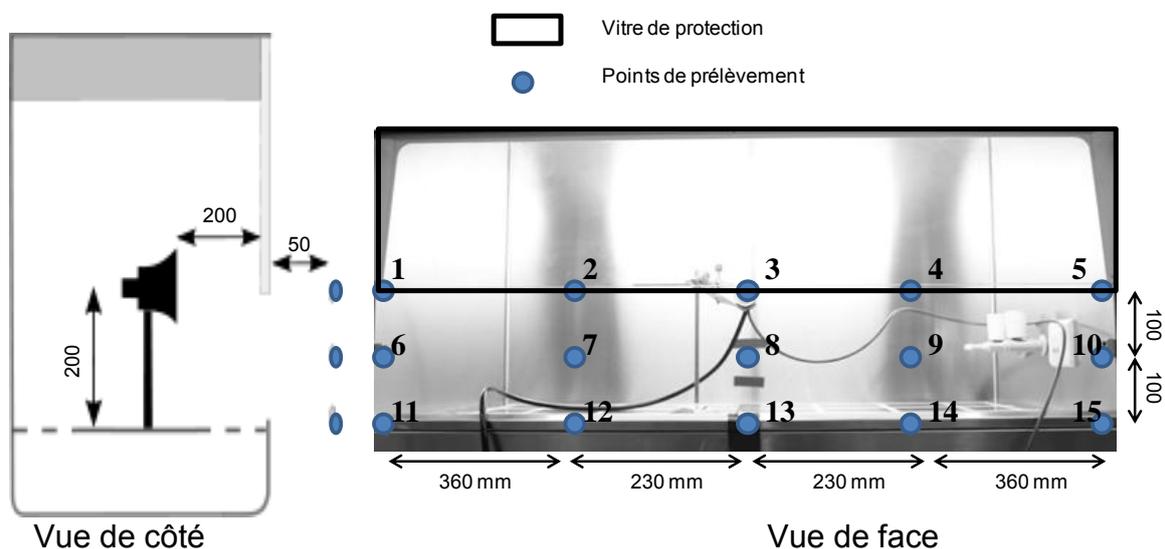


figure 3-8 : Positions du cône d'émission et des points de mesure

Concentration

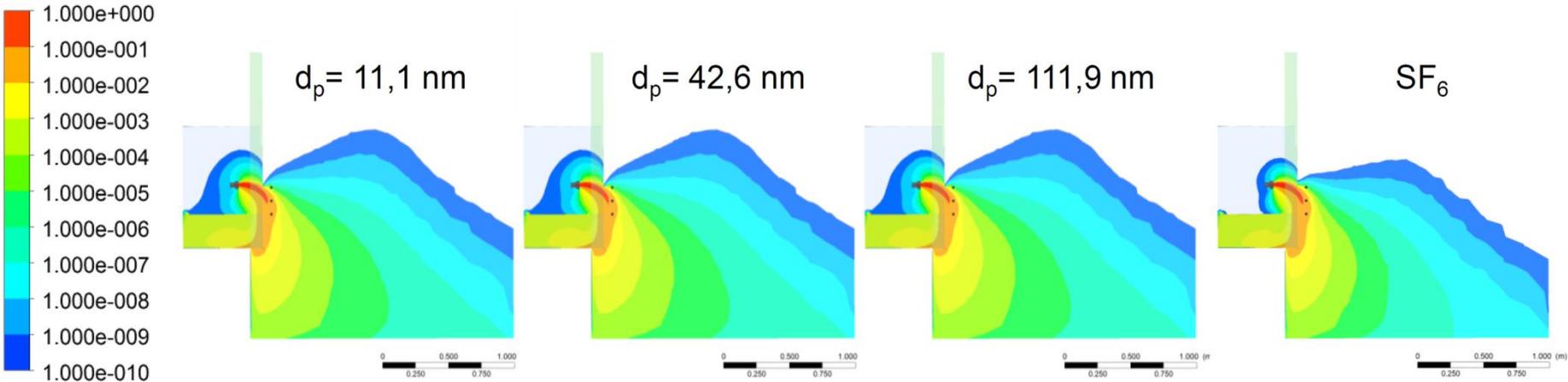


figure 3-9 : Vue de côté de l'évolution des profils de concentration pour les quatre traceurs dans le plan $x = 0$

Concentration

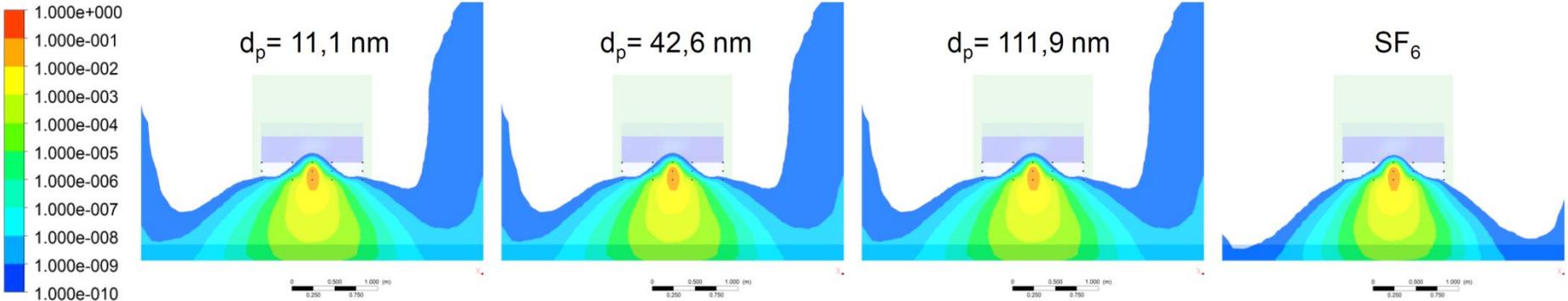


figure 3-10 : Vue de face de l'évolution des profils de la concentration pour les quatre traceurs dans le plan de mesure (soit 0,05 m en retrait de l'ouverture)

On se rend finalement compte que lors de nos expérimentations, seuls trois points sont situés dans des zones ou à proximité de zones, fortement concentrées ($> 10^{-3}$). Ces points correspondent à ceux pour lesquels nous avons pu obtenir des résultats significatifs dans la partie expérimentale (points 3, 8 et 13). Cependant les points 12 et 14 (situés en partie basse autour du point central) sont situés dans des zones où les concentrations sont de l'ordre de 10^{-4} , niveau relativement proche des concentrations observées autour du point 3. Et lors de la campagne de mesure, nous avons observé des concentrations non nulles en ces points, mais du fait d'une trop forte dispersion des concentrations mesurées, les résultats n'ont pu être considérés comme significatifs.

Pour la suite, nous représentons les résultats obtenus pour les deux types de polluants, en termes de coefficient de rétrodiffusion. Les points de mesure retenus sont les mêmes que ceux choisis expérimentalement (points 3, 8 et 13 définis dans la partie III.3).

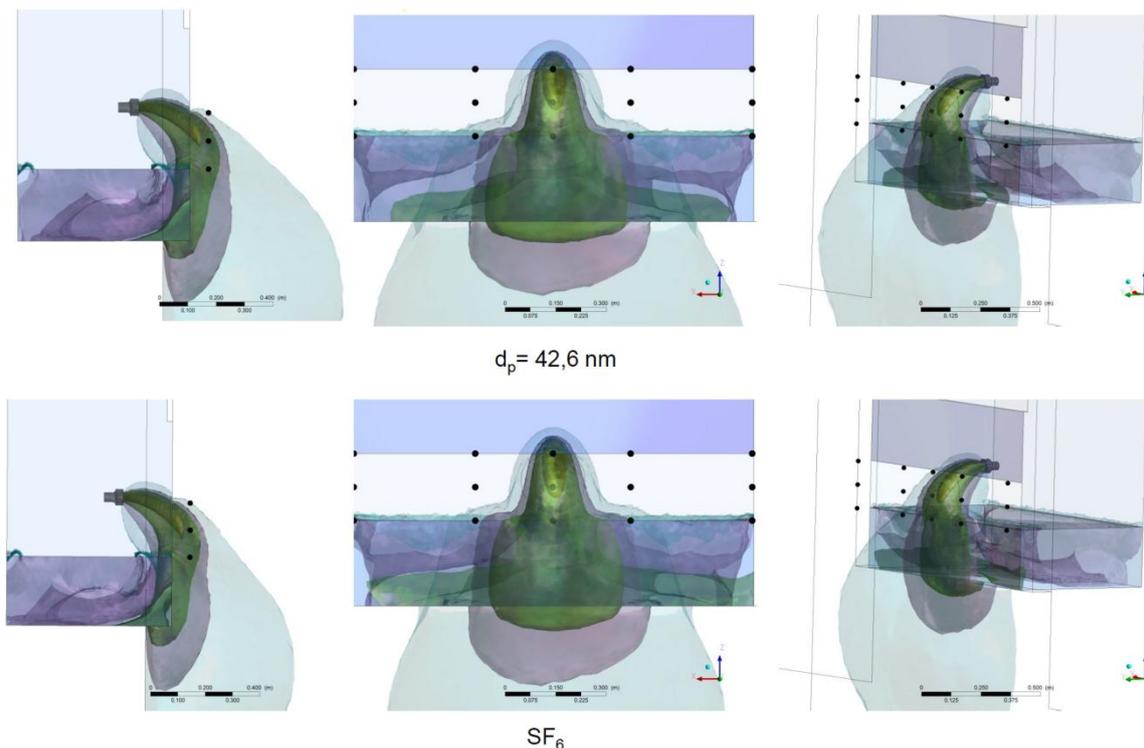


figure 3-11 : Différentes vues de surfaces isoconcentrations allant de 10^{-4} à 1 (du plus clair au plus foncé) : en haut $d_p = 42,6 \text{ nm}$ et en bas le gaz traceur

Notre objectif consiste à comparer les coefficients de rétrodiffusion obtenus expérimentalement avec les valeurs équivalentes, mais obtenues numériquement. Dans le cas des résultats numériques, nous connaissons avec certitude la position du point de prélèvement, ce qui n'est pas forcément le cas dans la partie expérimentale. De plus, expérimentalement, il existe une vitesse de prélèvement qui n'est pas négligeable mais qui n'a pas été prise en compte dans les simulations. Or, comme nous pouvons le noter sur la figure ci-dessus et également sur les figures précédentes (figure 3-8 et figure 3-9), la connaissance du point de mesure doit être

suffisamment précise puisqu'une légère déviation par rapport à celle-ci peut entraîner une modification relativement importante de la concentration mesurée. Ainsi, les coefficients présentés par la suite ne sont pas obtenus à partir d'une valeur ponctuelle, mais en prenant une valeur moyenne sur un volume englobant le point de mesure, à savoir une sphère de diamètre 2 cm.

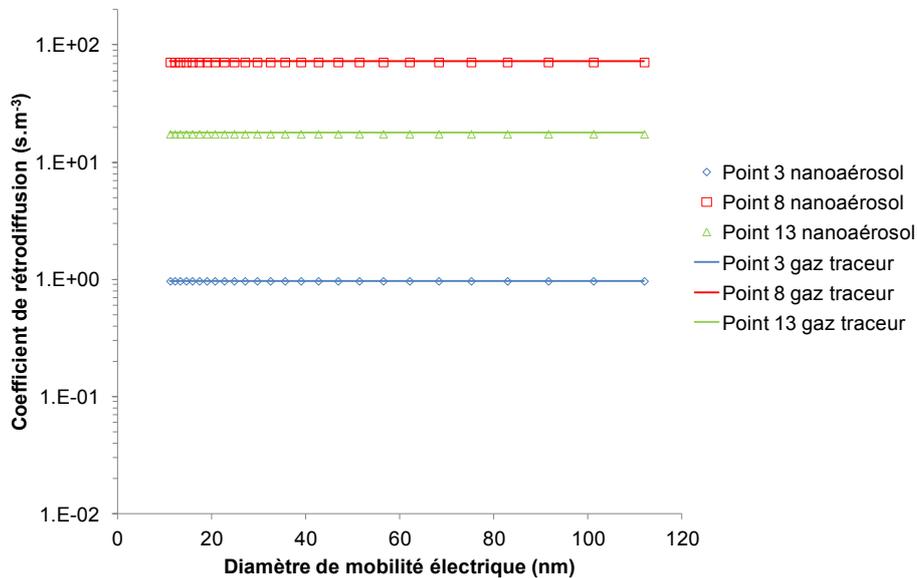


figure 3-12 : Coefficients de rétrodiffusion pour les trois points de mesure et les deux aérocontaminants

Sur la figure 3-12 et dans le tableau 3-3 sont présentées les valeurs des coefficients de rétrodiffusion obtenus par la simulation numérique aux différents points pour les nanoparticules et pour le traceur gazeux. La rétrodiffusion calculée par le modèle est indépendante du diamètre des particules et la rétrodiffusion gazeuse est toujours supérieure à celle d'un nanoaérosol. Cependant, ces valeurs sont relativement proche les unes des autres (ratio allant de 0,97 à 0,99).

tableau 3-3 : Valeurs des coefficients de rétrodiffusion moyennés sur tous les diamètres et du ratio $K_{\text{nano}}/K_{\text{gaz}}$

Point	K_{nano} numérique	K_{gaz} numérique	ratio
3	0,968	0,974	0,99
8	71,51	72,62	0,98
13	17,43	18,04	0,97

3. Simulation du dépôt des nanoparticules

Sur les figures suivantes sont présentées les vitesses de dépôt calculées pour différents diamètres de particules ($d_p = 11,1 \text{ nm}$ et $d_p = 42,6 \text{ nm}$ et $d_p = 111,9 \text{ nm}$). Sur la première figure (figure 3-13), on peut apprécier la répartition du dépôt sur l'ensemble du domaine considéré. Il apparaît alors que le dépôt le plus important, toutes tailles de particules confondues, se fait sur le plan de travail et dans la zone

de reprise d'air située sous ce même plan. Il existe également un dépôt très faible au niveau de la vitre dans une zone en forme de demi-cercle mais la vitesse de dépôt n'excède pas 10^{-6} m.s^{-1} , valeur relativement faible.

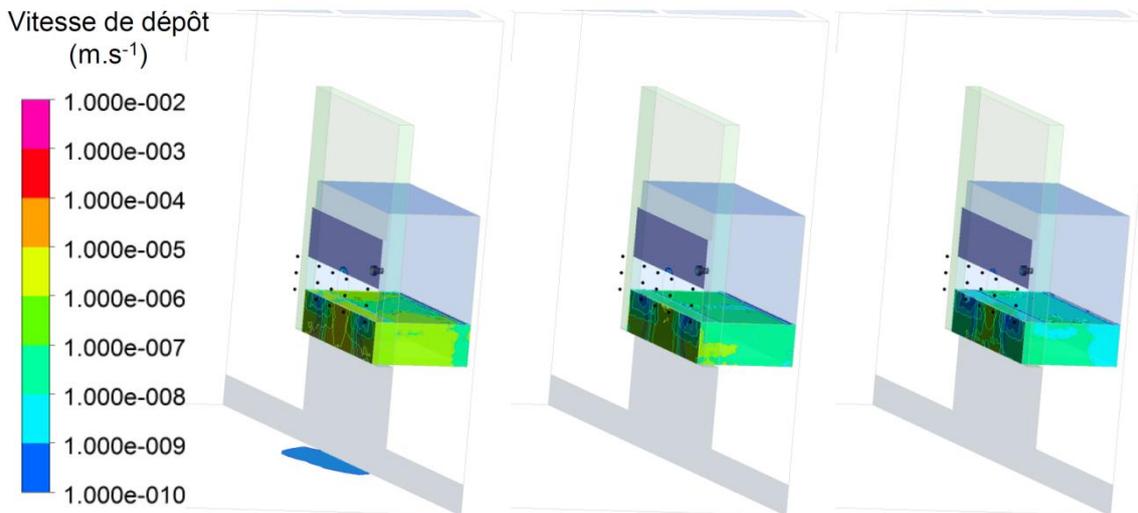


figure 3-13 : Répartition du dépôt sur l'ensemble du domaine pour trois gammes de diamètres, de gauche à droite : $d_p = 11,1 \text{ nm}$ et $d_p = 42,6 \text{ nm}$ et $d_p = 111,9 \text{ nm}$

Lorsque l'on compare la répartition du dépôt en fonction du diamètre des particules, on constate que plus les particules sont fines, plus le dépôt est important, mais les écarts restent infimes. La différence la plus marquante est visible sur la figure ci-dessus pour la valeur du dépôt au niveau du sol. En effet, seules les particules ayant un $d_p = 11,1 \text{ nm}$, présentent une vitesse de dépôt supérieure à $10^{-10} \text{ m.s}^{-1}$. Les vues en coupe (suivant l'axe $x=0$) présentées sur la figure 3-14 confirment les observations faites précédemment. De plus, celles-ci nous permettent de visualiser le dépôt sur les surfaces du cône d'injection. C'est l'endroit où le dépôt est le plus important puisque la vitesse de dépôt atteint 10^{-2} m.s^{-1} pour des particules de $d_p = 11,1 \text{ nm}$.

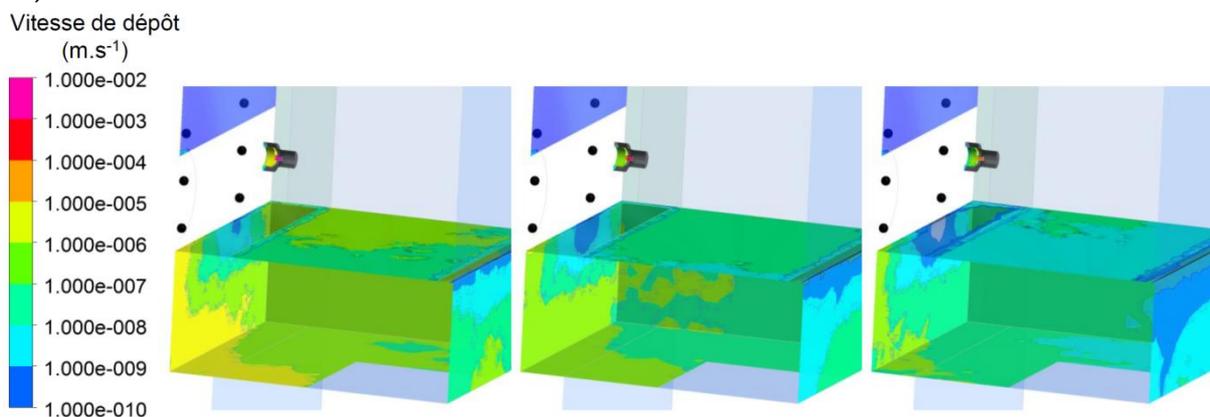


figure 3-14 : Répartition du dépôt dans l'enceinte et sur le cône de diffusion pour trois gammes de diamètres, de gauche à droite : $d_p = 11,1 \text{ nm}$ et $d_p = 42,6 \text{ nm}$ et $d_p = 111,9 \text{ nm}$

Nous avons calculé, à partir de ces résultats numériques et à l'aide de la distribution granulométrique mesurée expérimentalement, le nombre de particules déposé par

unité de temps sur les parois du cône pour les trois mêmes diamètres de particules que précédemment. Les valeurs sont présentées dans le tableau suivant :

tableau 3-4 : Nombre de particules déposées par unité de temps pour trois diamètres distincts

d_p (nm)	C_{in} (part.cm ⁻³)	particules déposées sur le cône (part.s ⁻¹)	% déposé
11,1	226900	255	0,11 %
42,6	1128000	282	0,03 %
111,9	492700	31	0,01 %

III.3 Confrontation aux résultats expérimentaux

Les valeurs des coefficients de rétrodiffusion obtenus à la fois numériquement et expérimentalement (banc d'essai INRS) sont présentées pour le nanoaérosol sur la figure 3-15 et pour le traceur gazeux sur la figure 3-16. Les répartitions de polluant obtenues expérimentalement ou numériquement sont comparables, le point 8 (point central dans le plan de mesure) est le point où est observé la plus grande rétrodiffusion (nanoparticules comme gaz traceur), ensuite vient le point 13 (en-dessous du point 8) et enfin le point 3 (au-dessus du point 8). Dans le cas de la rétrodiffusion nanoparticulaire, les ordres de grandeur sont globalement respectés entre valeurs expérimentales et leurs équivalents numériques, cela est d'autant plus vrai si les fluctuations liées aux mesures sont prises en compte. Dans le cas du gaz, les ordres de grandeur sont également très proches mis à part pour le point 3. La valeur obtenue par la simulation est sous-estimée en comparaison des valeurs expérimentales. Cette différence peut provenir des problèmes de résolution numérique qui ont fait apparaître dans la zone proche du point de mesure noté 3 des concentrations négatives (voir partie suivante).

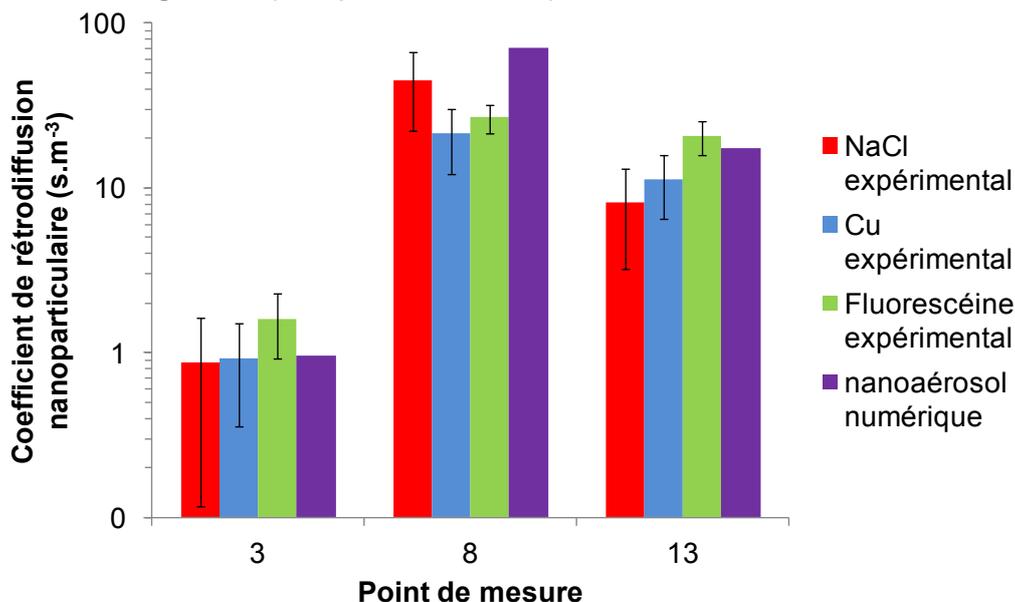


Figure 3-15 : Coefficients de rétrodiffusion nanoparticulaire obtenus expérimentalement et numériquement

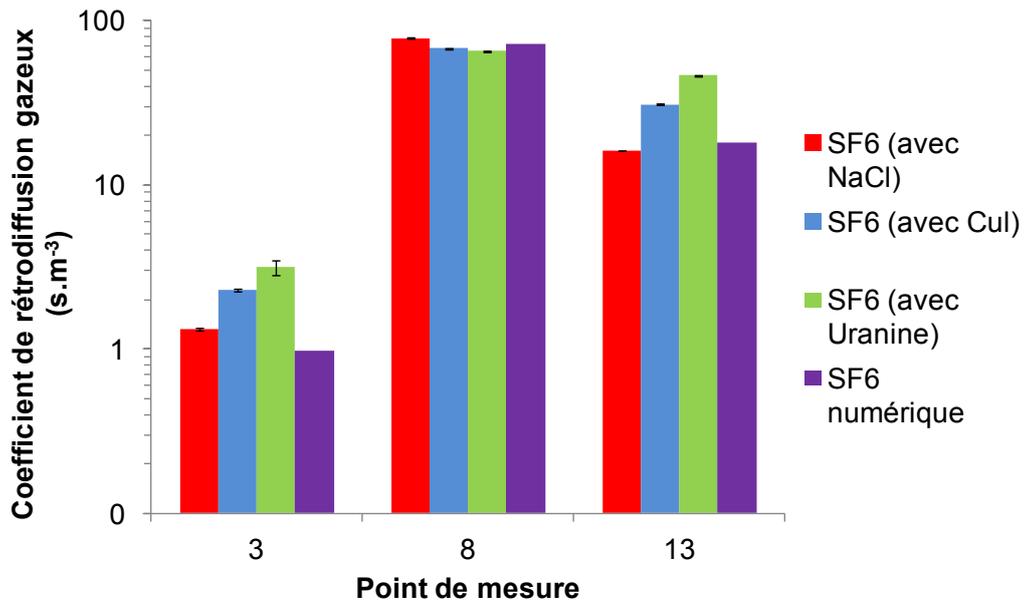


figure 3-16 : Coefficients de rétrodiffusion gazeux obtenus expérimentalement et numériquement

Bien que des écarts notables existent entre les valeurs mesurées et celles calculées, les ordres de grandeur sont globalement respectés et la distribution des différents polluants dans et aux abords du PSM semble très similaires.

Chapitre IV. Conclusion sur le modèle

Deux problèmes sont apparus durant la résolution. Le premier est que le dépôt semble être largement sous-évalué. Le maillage en serait la raison et plus particulièrement la distance entre la paroi et la première maille. En effet, le modèle de dépôt est optimal si la concentration C_{bulk} qui sert à calculer le flux de particules déposées est située hors des couches laminaires et de transition, donc à un $y^+ > 30$. En se référant à la figure ci-dessous, on constate que les grandeurs y^+ sur la vitre de protection sont comprises entre 1 et 8, valeurs nettement inférieures à 30. Le dépôt ne peut être alors correctement résolu.

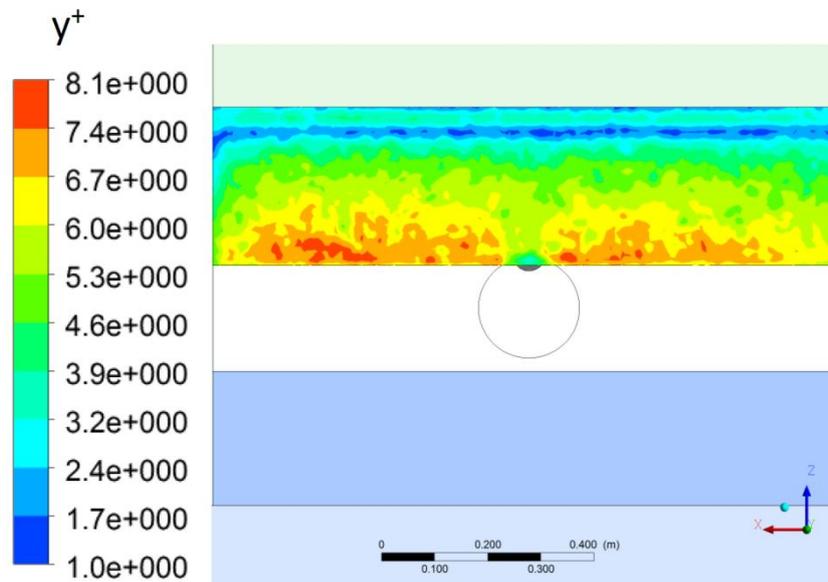


figure 3-17 : Valeurs des y^+ sur la vitre de protection

L'apparition de valeur négative lors de la résolution du cas est le deuxième problème. Comme on peut le voir sur la figure 3-18, qui représente les valeurs de la concentration sur la surface $x=0$ et pour un diamètre $d_p = 11,1 \text{ nm}$, on constate qu'il existe un certain nombre de mailles contenant une valeur de concentration négative (contenue dans le cercle rouge). Même si, d'une part le nombre de ces mailles est restreint et que, d'autre part les valeurs négatives sont très faibles (valeur absolue maximale de l'ordre de 10^{-5}), le fait que ces mailles soient situées dans l'axe de l'émission est gênant. D'autant plus que la mesure des concentrations aux points 3, 8 et 13 (points les plus intéressants pour la comparaison avec les résultats expérimentaux) a des chances d'être altérée par la diffusion numérique des valeurs négatives.

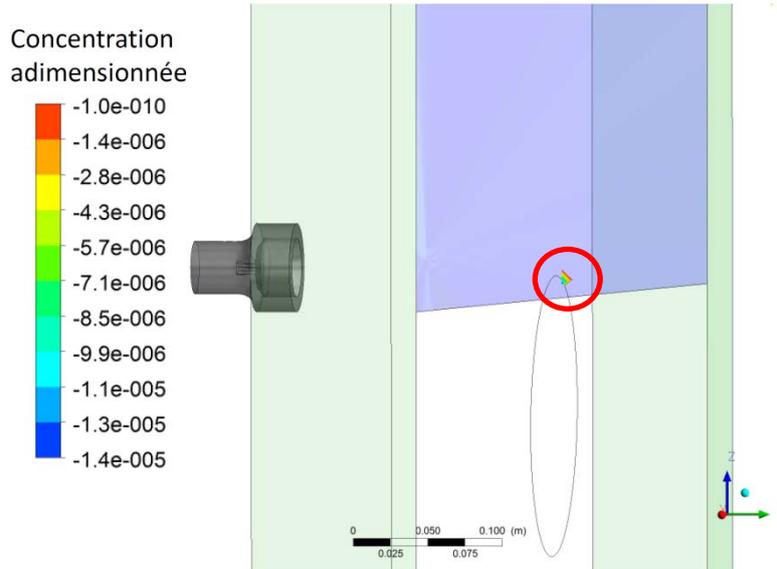


figure 3-18 : Valeurs négatives de la concentration adimensionnée correspondant à un diamètre $d_p = 11,1 \text{ nm}$ dans le plan $x=0$

Il faut donc apporter un soin très particulier à la construction du maillage. Les améliorations apportées en ce sens sont l'ajout d'une couche limite de maillage qui permet le contrôle de la distance à la paroi (problème de la résolution du dépôt) et le raffinement des mailles les plus distordues (problème de la diffusion de concentration négative). D'autre part, de nombreuses hypothèses ont été émises de façon à simplifier la résolution du cas test.

Cependant, des phénomènes tels que l'agglomération/coagulation des particules ou la présence d'un champ électrique ou encore d'un gradient de température peuvent expliquer les écarts constatés entre les résultats obtenus numériquement et expérimentalement. Afin d'améliorer la pertinence des modèles choisis, ceux-ci devront intégrer à l'avenir la prise en compte de tels mécanismes.

Conclusions et perspectives

Face à l'émergence du risque lié aux nanoparticules, la surveillance des ambiances de travail et l'utilisation de moyens de protection des opérateurs sont des problèmes qui préoccupent les acteurs de la prévention. Les travaux de la thèse présentée ici, cofinancée par l'INRS et l'IRSN, s'inscrivent dans cette thématique. Plus précisément, l'objectif principal de la thèse est de vérifier si les dispositifs de confinement aéraulique existants sont adaptés lors de la manipulation de nanoparticules. En l'absence de données et de tests normalisés, nous avons dû, dans un premier temps, développer des techniques de mesure permettant de quantifier l'exposition des opérateurs, lors de l'émission de nanoparticules dans une enceinte ventilée. Deux techniques ont alors retenu notre attention, l'une basée sur le dénombrement, l'autre reposant sur l'utilisation d'un marqueur spécifique. De plus, afin de confronter le comportement d'un aérosol nanostructuré à celui d'un traceur passif, un gaz traceur (SF_6) a été émis simultanément dans des conditions similaires. Enfin, nous avons utilisé des modèles afin de qualifier les phénomènes de transport et de dépôt des aérosols et simuler ainsi le comportement d'un nanoaérosol et d'un gaz lors de leur émission dans un poste de sécurité microbiologique. Notre objectif réside alors dans la validation d'un modèle permettant de prédire le comportement de nanoparticules et aider à la mise en place de dispositifs de protection adéquats.

La confrontation des comportements particulaires et gazeux ont permis de redémontrer que le fonctionnement d'un PSM, ou de tout autre dispositif de confinement comparable, était très sensible aux conditions aérauliques ambiantes (Johnson et Fletcher 1996 ; Tsenget *al.*, 2007a et 2007b ; Nicholson *et al.*, 1999). L'influence des propriétés physico-chimiques, l'intensité et la disposition de la source, la présence d'un champ électrique, sont également autant de paramètres importants à explorer pour obtenir une base de données solide et complète. A terme, si les résultats obtenus confirment la très forte similitude des comportements nanoparticulaires et gazeux, un test des performances de confinement basé sur une émission de gaz traceur pourrait être un indicateur fiable du niveau de protection offert par le dispositif lors de la manipulation de nanoparticules.

Dans un deuxième temps, la génération d'un nanoaérosol de fluorescéine et sa confrontation aux résultats obtenus avec d'autres types d'aérosols nanostructurés nous a permis de conclure qu'une mesure basée sur la détection de la fluorescence pouvait constituer un indicateur également pertinent du confinement d'un nanoaérosol. Cependant, il faudra s'assurer de la distribution granulométrique de l'aérosol prélevé afin de vérifier que celui-ci a une distribution en masse relativement proche de la gamme nanométrique. Un des points soulevés ici, pour lequel des résultats ont également été présentés dans la partie concernant les essais menés à l'IRSN, est que cette technique, outre la mesure de l'efficacité de confinement, permet de quantifier le dépôt sur les surfaces de travail. En effet, comme nous l'avons expliqué, les nanoparticules présentent un taux de dépôt élevé, ainsi la contamination des surfaces est un problème non négligeable lorsque l'on manipule des nanomatériaux.

Des résultats obtenus sur la base d'une simulation numérique du banc d'essai développé à l'INRS sont enfin venus compléter les travaux expérimentaux. Les premiers résultats confirment les tendances obtenues expérimentalement. Néanmoins, de nombreuses améliorations doivent encore être apportées au modèle pour se rapprocher de l'expérience. Dans un premier temps, il s'agira de modifier le maillage afin de respecter les conditions de distance à la paroi pour une résolution optimale du dépôt. La prise en compte de phénomènes jusque-là négligés (coagulation/agglomération, forces électrostatiques) permettront d'affiner la précision de la résolution.

D'un point de vue préventif, cette étude confirme que les règles de bonnes pratiques, déjà définies de manière générale sur l'utilisation des sorbonnes ou d'autres types d'enceintes ventilées (INRS, 2009 et 2012), doivent être respectées le plus rigoureusement possible lorsque des nanoparticules de dangerosité inconnue sont manipulées ou produites. Ainsi, les vitesses à l'ouverture doivent être comprises entre $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $0,6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Une compensation de l'air extrait doit être présente dans la salle contenant le dispositif, celui-ci doit également être dans un environnement calme (zone où les passages sont restreints). Les mouvements effectués par l'opérateur dans l'enceinte doivent être maîtrisés et minimisés de façon à ne pas perturber le phénomène d'aspiration. Il faut également éviter l'encombrement de la surface de travail, ce qui entrainerait une baisse significative de l'efficacité de confinement.

De futurs travaux de recherche portant sur l'évaluation de l'efficacité de dispositifs de confinement aérauliques sont prévus à l'INRS ; un pôle « nano » a d'ailleurs été construit sur le centre de Lorraine afin de réunir les nombreuses activités ayant un lien avec le risque nanométrique. Ces recherches doivent porter sur des enceintes différentes de celles testées durant la thèse, principalement des sorbonnes de laboratoire. Les conditions de production des nanoparticules seront modifiées afin qu'elles correspondent à des situations réelles d'émission. Il faudra alors réaliser des mesures de caractérisation de source sur site afin d'acquérir une base de données fiable et qui tienne compte des différentes activités mettant en jeu des nanoparticules. La contamination des surfaces est également un axe qui sera abordé lors des études futures. Ces mesures permettront non seulement de définir des protocoles de nettoyage mais aussi de confronter les résultats expérimentaux avec ceux issus de simulations numériques basées sur les modèles implémentés durant la thèse.

Références Bibliographiques

- ADEME (2007) Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées : PM10, PM2.5, PM1 et PM0.1, *Convention ADEME n° 04-74-C0018*
- AFNOR (2007) Atmosphères des lieux de travail - particules ultrafines, nanoparticules et aérosols nanostructurés - caractérisation et évaluation de l'exposition par inhalation, *FD ISO/TR 27628 AFNOR X43-221*
- AFSSET (2008) LES NANOMATERIAUX : Effets sur la santé de l'homme et sur l'environnement, Saisine Afsset n° 2005/010
- ANSI/ASHRAE Standard 110 (1995) Method of Testing Performance of Laboratory Fume Hoods, *American Society of Heating, Refrigerating and Air-Conditioning Engineers*
- Asbach C., Kaminski H. *et al.* (2009) Comparison of four mobility particle sizers with different time resolution for stationary exposure measurements, *Journal of Nanoparticle Research* 11 : 1593-1609
- ASTM (2006) Terminology for nanotechnology. *E 246-06*
- Bau S. (2007) Caractérisation du générateur PALAS GFG-1000, *Rapport interne IRSN*
- Bau S. (2008) Etude des moyens de mesure de la surface des aérosols ultrafins pour l'évaluation de l'exposition professionnelle, *Institut National Polytechnique de Lorraine*, Thèse
- Bonthoux F. (2008) Mesure de vitesses et de débits sur PSC CYTOSAFE-N 2000, Rapport interne INRS, Etude PER C.7.2.044
- Borra J.P. (2006) Nucleation and aerosol processing in atmospheric pressure electrical discharges : powders production, coatings and filtration, *Journal of physics D* 39: 19-54
- British Standards Institution, BSI (2007) PD 6699-2:2007, Nanotechnologies –Part 2: Guide to safe handling and disposal of manufactured nanomaterials, *London: BSI*
- Brochot C. (2012) Filtration des nanoparticules - Application aux Appareils de Protection Respiratoires, LRGP, Thèse
- BS 7258 part 4 (1994) Laboratory fume cupboards. Method for determination of the containment value of a laboratory fume cupboard, BSI Standard
- BSI British Standard (2005) Vocabulary : Nanoparticles. *PAS 71 : 2005*
- CE (2011) Recommandation de la commission du 18 octobre 2011 relative à la définition des nanomatériaux, *Journal officiel de l'Union européenne*

- CEA (2012) http://www.cea.fr/technologies/nanotechnologies_et_nanosciences/nanosciences_et_nanotechnologies_quelques_reper
- Cheng YS. (2001) Condensation detection and diffusion size separation techniques. *BARON P.A., WILLEKE, K.– Aerosol Measurement, Principles, Techniques and Applications*. 2^{ème} ed. New York, Wiley Interscience, 569-601
- Commission Européenne CE (2007) Nanosciences et nanotechnologies : un plan d'action pour l'Europe 2005-2009 - second rapport de mise en œuvre 2007-2009
- Evans D.E., Harrison R.M. et Ayres J.G. (2003a) The generation and characterisation of elemental aerosols for human challenge studies, *Journal of Aerosol Science* 34: 1023-1041
- Evans D.E., Harrison R.M. et Ayres J.G. (2003b) The generation and characterization of metallic and mixed element aerosols for human challenges studies, *Aerosol Science and Technology* 37: 975-987
- Flagan RC. (2001) Electrical Techniques, *BARON P.A., WILLEKE, K.– Aerosol Measurement, Principles, Techniques and Applications*. 2^{ème} ed. New York, Wiley Interscience, 537-568
- Hämeri K., Koponen I., Aalto P.P. et Kulmala M. (2002) The particle detection efficiency of the TSI-3007 condensation particle counter, *Journal of Aerosol Science*, 33(10) : 1463-1469
- Heim M., Kasper G., Reischl G.P., Gerhart C. (2004) Performance of a New Commercial Electrical Mobility Spectrometer, *Aerosol Science and Technology* 38(2): 3-14
- Heim M., Mullins B.G., Wild M., Meyer J. et Kasper G. (2005) Filtration efficiency of aerosol particles below 20 nanometers, *Aerosol Science and Technology* 39: 782-789
- Hervé-Bazin B. *et al.* (2007) Les nanoparticules : Un enjeu majeur pour la santé au travail ? EDP Editions ISBN: 978-1-607260-13-4
- HesaMag (2009) Le nanomarché, une bonne affaire ?, dossier spécial #01, *European Trade Union Institute*
- Hinds W.C. (1999) Aerosol technology : properties, behavior and measurement of airborne particles (2ème édition) *New York : Wiley Interscience*
- Honnert B., Vincent R. (2007) Production et utilisation industrielle des particules nanostructurées, *HST ND 2277-209-07*, INRS
- Horvath H. et Gangl M. (2003) A low voltage spark generator for production of carbon particles, *Journal of Aerosol Science* 34: 1581-1588

- Huang S.H., Chen C.W., Chang C.P., Lai C.Y. et Chen C.C. (2007) Penetration of 4.5nm to 10 m aerosol particles through fibrous filters, *Journal of Aerosol Science* 38: 719-727
- Institut de Recherche Robert-Sauvé en Santé et en Sécurité du Travail, IRSST (2009) Report R-599, Best practices guide to synthetic nanoparticle risk management, *IRSST*
- Institut National de Recherche et Sécurité, INRS (2009) ED795, Guide pratique de ventilation : Sorbonnes de laboratoire, *INRS éditions*
- Institut National de Recherche et Sécurité, INRS (2012) ED6115, Nanomateriaux : Prévention des risques dans les laboratoires, *INRS éditions*
- Institut National de Recherche et Sécurité, INRS ND 2201-193-03 (2003) Postes de sécurité microbiologique – Postes de sécurité cytotoxique : choix et utilisation, *INRS éditions*
- ISO 14644-1 (1999) Salles propres et environnements maîtrisés apparentés - Partie 1: Classification de la propreté de l'air
- ISO/TS 27687:2008. (2008) Nanotechnologies - Terminologie et définitions relatives aux nano-objets - Nanoparticule, nanofibre et nanofeuillet
- Jaenicke R. (1993) Tropospheric aerosols, In: Hobbs, P.V. (Ed.), *Aerosol–Cloud–Climate Interactions*, Academic Press, San Diego, CA :1–31
- Johnson A.E., Fletcher B. (1996) The effect of operating conditions on fume cupboard containment, *Safety Science* 24(1): 51-60
- Kesten J., Reineking A. et Porstendörfer J. (1991) Calibration of a TSI model 3025 ultrafine condensation particle counter, *Aerosol Science and Technology*,15: 107-111
- Kim D.S., Hong S.B., Kim Y.J. et Lee K.W. (2006) Deposition and coagulation of polydispersé nanoparticles by Brownian motion and turbulence, *Journal of Aerosol Science* 37: 1781-1787
- Kim D.S., Park S.H., Song Y.B., Kim D.H. et Lee K.W. (2003) Brownian coagulation of polydisperse aerosols in the transition regime, *Journal of Aerosol Science* 34: 859-868
- Kim J.T. et Chang J.S. (2005) Generation of metal oxide aerosol particles by a pulse spark discharge technique, *Journal of Electrostatics* 63: 911-916
- Koivisto A.N., Yu M., Hämeri K. et Seipenbusch M. (2012) Size resolved particle emission rates from an evolving indoor aerosol system, *Journal of Aerosol Science* 47: 58-69

- Lai A.C.K. et Nazaroff W.W. (2001) Aerosol deposition in turbulent channel flow on a regular array of three dimensional roughness elements, *Journal of Aerosol Science* 32: 121-137
- Le Bihan O., Mathé F. (2006) Connaissance de la pollution par des particules submicroniques, *Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air*
- Lee K.W. et Gieseke J.A. (1994) Deposition of particles in turbulent pipe flows, *Journal of Aerosol Science* 25: 699-709
- Lux Research Inc (2008) Nanomaterials State of the Market Q3 2008: Stealth Success, Broad Impact
- Matson U., Ekberg L. et Afshari A. (2004) Measurement of ultrafine particles : a comparison of two handled condensation particle counters, *Aerosol Science and Technology*, 38 : 487-495
- Maynard A.D., Kuempel E.D. (2005) Airborne nanostructured particles and occupational health, *Journal of Nanoparticle Research* 7 : 587-614
- Mordas G., Manninen H.E., Petäjä T., Aalto P.P., Hämeri K. et Kumala M. (2008) On operation of the ultra-fine water –based CPC TSI 3786 and comparison with other TSI models (TSI 3776, TSI 3772, TSI 3025, TSI 3010, TSI 3007), *Aerosol Science and Technology*,42(2): 152-158
- Morrow R. (1987) Properties of streamers and streamers channels in SF₆, *Physical Reviews A* 35: 1778-1785
- Mouret G. (2008) Etude de la filtration des aérosols nanométriques, *Institut National Polytechnique de Lorraine*, Thèse
- Murdock R.C., Braydich-Stolle L., Schrand A.M., Schlager J.J., et Hussain S.M. (2008) Characterization of nanomaterial dispersion in solution prior to in vitro exposure using dynamic light scattering technique, *Toxicological Sciences* 101(2) : 239-253
- National Science Foundation (NSF) 2001, cited by RedHerring, The Biotech Boom: the view from here, online article of 5th November, 2001
- Nerisson P. (2009) Modélisation du transfert des aérosols dans un local ventilé, *Institut National Polytechnique de Toulouse*, Thèse
- Nicholson G.P., Clark R.P. et De Calcina-Goff M.L. (1999) Theoretical and practical comparison of the potassium iodide tracer method (KI-Discus) for assessing the containment efficiency of fume cupboards with the gas tracer method described in BS7258: 1994: Part4, *Annals of Occupational Hygiene* 43(4): 257-267

- Oberdörster G., Oberdörster E. et Oberdörster J. (2005) Nanotoxicology: an emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles, *Environmental Health Perspectives* 113(7) : 823-39
- OCDE (2003) Les nanotechnologies changent d'échelle, Direction de la science, de la technologie et de l'industrie, OCDE Observateur
- Poland, Duffin, Kinloch *et al.* (2008) Carbon nanotubes introduced into the abdominal cavity of mice show asbestos-like pathogenicity in a pilot study. *Nat. Nanotechnol.* 3(7) :423-8
- prEN 12469:2000 (2000) Biotechnology. Performance criteria for microbiological safety cabinets, AFNOR
- prEN 14175-3:2003 (2003) Fume cupboards. Type test methods, AFNOR
- Prevost C. et Dupoux N. (1998b) Etude du confinement dynamique au niveau de l'ouverture d'une enceinte en présence d'un opérateur : rapport d'avancement, Rapport d'étude interne IRSN/SERAC/LECEV/98-32
- Prevost C., Laborde J.C. et Dupoux N. (1997) Etude numérique et expérimentale du confinement dynamique à un poste de travail, *Ventilation 1997*, Ottawa
- Prevost C., Laborde J.C. et Dupoux N. (1998a) Influence de la dimension des aérosols sur l'efficacité d'une barrière de confinement, *14^{ème} Congrès Français sur les Aérosols*, Paris
- Reinmann R. et Akram M. (1997) Temporal investigation of a fast spark discharge in chemically inert gases, *Journal of physics D Applied Physics* 30(7): 1125-1134
- Ricaud M., Witschger O. (2008) ED6050, Les nanomatériaux : Définitions, risques toxicologiques, caractérisation de l'exposition professionnelle et mesures de prévention, *INRS éditions*
- Roth C., Ferron G.A., Karg E., Lentner B., Schumann G., Takenada S. et Heyder J. (2004) Generation of ultrafine particles by spark discharging, *Aerosol Science and Technology* 38: 228-235
- Roth C., Karg E. et Heyder J. (1998) Do inhaled ultrafine particles cause health effects in rats? I. Particle production, *Journal of Aerosol Science* 29(1): 679-680
- Schmidt G. (2001) Nanoscale materials in chemistry. K.J. Klabunde (Ed.), John Wiley & Sons, New York, pp. 23-24
- Schwyn S., Garwin E. et Schmidt-Ott A. (1988) Aerosol generation by spark discharge, *Journal of Aerosol Science* 19(5): 639-642

- Sem G.J. (2002) Design and performance characteristics of three continuous flow condensation particle counters: A summary, *Atmospheric Research*, 62 : 267-294
- Shih T.H., Liou W.W., Shabbir A., Yang Z. et Zhu J. (1995) A new eddy viscosity model for high Reynolds' number turbulence flows, *Journal of Computational Fluids* 24(3) : 227-238
- Skaptsov A.S., Baklanov A.M., Dubtsov S.N., Laulainen N.S., Sem G. et Kaufman S. (1996) An experimental study of the thermal rebound effect of nanometer aerosol particles, *Journal of Aerosol Science* 27(1): 145-146
- Tabrizi N.S., Ullmann M., Vons V.A., Lafont U. et Schmidt-Ott A. (2009) Generation of nanoparticles by spark discharge, *Journal of Nanoparticle Research* 11(2): 315-332
- The Royal Society and the Royal Academy of Engineering (2004) Nanoscience & nanotechnologies: opportunities and uncertainties; www.nanotec.org.uk
- Tian L. et Ahmadi G. (2006) Particle deposition in turbulent duct flows—comparisons of different model predictions, *Aerosol Science* 38: 377-397
- Tinker N. (2001) « 2001 Business of nanotech survey », NanoBusinessAlliance, NBA Executive Vice President
- Tsai S.J., Ada E., Isaacs J.A. et Ellenbecker M.J. (2009a) Airborne nanoparticle exposures associated with the manual handling of nanoalumina and nanosilver in fume hoods, *Journal of Nanoparticle Research* 11: 147-161
- Tsai S.J., Huang R.F., Ellenbecker M.J. (2009b) Airborne nanoparticle exposures while using constant-flow, constant velocity, and air-curtain-isolated fume hoods, *Annals of Occupational Hygiene* 1-10
- Tseng L.C., Huang R.F., Chen C.C. et Chang C.P. (2007a) Effects of sash movement and walk-bys on aerodynamics and contaminant leakage of laboratory fume cupboards, *Industrial Health* 45: 199-208
- Tseng L.C., Huang R.F., Chen C.C. et Chang C.P. (2007b) Aerodynamics and performance verifications of test methods for laboratory fume cupboards, *Annals of Occupational Hygiene* 51(2): 171-183
- Ulevicius V., Willeke K., Grinshpun S.A., Donnelly J., Lin X. et Mainelis G. (1997) Aerosolization of Particles by Bubbling Liquid: Characteristics and Generator Development, *Aerosol Science Technology* 26: 175-190
- University of California Berkeley (2007) Nanotechnology: guidelines for safe research practices, *University of California*, Berkeley, CA

- Warheit D.B., Sayes C.M., Reed K.L. et Swain K.A. (2008) Health effects related to nanoparticle exposures: Environmental, health and safety considerations for assessing hazards and risks, *Pharmacology & Therapeutics* 120 : 35-42
- Wiedensohler A. (1988) Technical note: An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range, *Journal of Aerosol Science*, 19(3) : 387-389
- Witschger O., Fabriès J.F. (2005) Particules ultra-fines et santé au travail 1- Caractéristiques et effets potentiels sur la santé, *HST ND 2227-199-05*, INRS
- Wlodzimierz P., Juhani R., Chih Chieh C., Man Juan P. et Willeke K. (1990) Size-Fractionating Aerosol Generator, *Aerosol Science and Technology* 13(4): 450-458
- Wood N.B. (1981) A simple method for the calculation of turbulent deposition to smooth and rough surfaces, *Journal of Aerosol Science* 12(3): 275-290
- Zaichik L.I., Drobyshevsky N.I., Filipov A.S., Mukin R.V. et Strizhov V.F. (2010) A diffusion-inertia model for predicting dispersion and deposition of low-inertia particles in turbulent flows, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 53 : 154-162

Résumé

Les travaux de thèse ont permis de quantifier l'efficacité de confinement de deux dispositifs distincts (un poste de sécurité microbiologique et une sorbonne classique) lors de la production simultanée de nanoaérosols et d'un gaz traceur (SF_6). Deux techniques de mesure différentes ont été exploitées : la première basée sur la mesure de la distribution granulométrique de l'aérosol s'échappant (SMPS-C), l'autre reposant sur la détection de fluorescence d'échantillons prélevés (fluorescéine sodée utilisée comme marqueur des nanoparticules). Les résultats ont permis d'établir une forte corrélation entre le comportement d'un nanoaérosol et celui d'un gaz traceur lorsqu'ils sont émis simultanément dans une enceinte ventilée. Plus encore, on a observé une rétrodiffusion gazeuse quasiment deux fois plus importante pour le gaz traceur que pour les nanoparticules testées dans différentes configurations. Le dépôt ainsi que l'agglomération présents dans le cas du transport d'un nuage de nanoparticules peuvent expliquer ces écarts dans le niveau global de confinement obtenu. Cependant, ce constat n'est pas un gage de protection suffisante dans la mesure où il n'existe pas de valeur spécifique de référence lors de l'exposition à des nanoparticules. Il est alors utile de respecter les règles de bonne conduite qui ont été définies dans de nombreux guides INRS ou au travers de multiples études de l'IRSN.

En plus de ces études expérimentales, le banc d'essai développé à l'INRS a fait l'objet d'une simulation numérique permettant de valider un modèle eulérien de transport et de dépôt implémenté dans un code de CFD destiné à modéliser le comportement d'un nanoaérosol. Les résultats numériques/expérimentaux sont concordants ; les ordres de grandeur des niveaux de confinement atteints sont comparables.

Mots-clés : *transfert de nanoparticules, enceinte ventilée, exposition professionnelle, confinement dynamique, poste de sécurité microbiologique, rétrodiffusion*

Abstract

The thesis works have enabled us to quantify the containment efficiency of two devices (a microbiological safety cabinet and classical fume hood) during the simultaneous production of nanoaerosols and a tracer gas (SF_6). Two different measurement techniques were used: the first based on the measurement of particle size distribution of the escaping aerosol (SMPS-C), the other based on the detection of fluorescence of samples (sodium fluorescein used as marker of nanoparticles). The results have established a strong correlation between the behavior of a nanoaerosols and the tracer gas when they are emitted simultaneously in a ventilated enclosure. More, we observed that tracer gas back diffusion was almost twice greater than for nanoparticles back diffusion in all the tested configurations. The deposit and the agglomeration present in the case of transport of a cloud of nanoparticles can explain these differences in the overall level of containment. However, this observation does not guarantee sufficient protection since there is no specific reference value for nanoparticle exposure. It is useful to observe the guidelines that have been defined in many INRS publications or through IRSN studies.

In addition to these experimental studies, the test-rig developed at INRS has been numerically simulated to validate an eulerian transport and deposition model implemented in a CFD code for modeling the behavior of a nanoaerosol. Numerical and experimental results are concordant; orders of magnitude for the achieved containment levels are comparable.

Keywords: *nanoparticle transfer, fume cupboard, operator exposure, dynamical containment, Microbiological safety cabinet, back diffusion*