HAL
open science

Étude de la filtration des aérosols nanométriques

Guillaume Mouret

To cite this version:

Guillaume Mouret. Étude de la filtration des aérosols nanométriques. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2008. Français. NNT : 2008INPL063N . tel-01753001

HAL Id: tel-01753001

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01753001v1

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.

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

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 National Polytechnique de Lorraine
2, Avenue de la Forêt de Haye
BP 3
F-54501 Vandoeuvre-les-Nancy Cedex

ENSIC
1, Rue Grandville
BP 20451
F-54001 Nancy Cedex

Ecole Doctorale RP2E
Ressources Procédés Produits Environnement

Laboratoire des Sciences du Génie Chimique
UPR CNRS 6811
1, Rue Grandville
BP 20451
F-54001 Nancy Cedex

Institut National de Recherche et de Sécurité
Département Ingénierie des Procédés
Avenue de Bourgogne
BP 27
F-54501 Vandoeuvre-les-Nancy Cedex

THESE

présentée en vue de l'obtention du grade de
Docteur de l'INPL

spécialité
Génie des Procédés et des Produits

Etude de la Filtration des Aérosols Nanométriques

---

par
Guillaume MOURET

Soutenue publiquement le 7 novembre 2008, devant le jury composé de :

Président	**Jean-Claude ANDRE**	Directeur de Recherche CNRS
Rapporteurs	**Denis BOULAUD**	Adjoint au Directeur de l'Environnement et de l'Intervention de l'IRSN
	Yves GONTHIER	Professeur à l'Université de Savoie
Examinateurs	**Denis BEMER**	Ingénieur d'Etudes à l'INRS
	Sandrine CHAZELET	Maître de Conférences à l'UHP, Nancy 1
	Laurence LE COQ	Maître-Assistant à l'Ecole des Mines de Nantes
	Dominique THOMAS	Professeur à l'Université H. Poincaré, Nancy 1
	Jacques VENDEL	Ingénieur de Recherche à l'IRSN

Avant-Propos

Cette thèse est le résultat d'une collaboration entre l'Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS) et le Laboratoire des Sciences du Génie Chimique (LSGC). Aussi, s'il vous prenait l'envie irrésistible (je n'ai pas dit folle…) de vous aventurer dans ce manuscrit, n'oubliez pas d'y voir le fruit de toute une équipe, et non pas d'un seul (même s'il va de soi que le thésard apparaît comme l'actionnaire majoritaire dans cette histoire…).

Merci tout d'abord au Professeur Dominique THOMAS, mon directeur de thèse, de m'avoir accueilli dans son équipe et suivi, malgré ses nombreuses responsabilités, durant ces trois ans. Un merci tout particulier à Mme. Sandrine CHAZELET, pour sa patience à toute épreuve, et pour le soutien scientifique et moral qu'elle m'a apporté. Merci aussi à M. Denis BEMER, de l'INRS, pour ses conseils avisés et son regard critique sur nos résultats.

Ma reconnaissance va aux professeurs Denis BOULAUD et Yves GONTHIER ; merci à eux d'avoir accepté d'être les rapporteurs de mon manuscrit et, par leurs remarques, de m'avoir amené à lui donner sa forme définitive. Merci au professeur Jean-Claude ANDRE d'avoir accepté d'être président de mon jury, et aux professeurs LE COQ et VENDEL d'en avoir été membres.

Je tiens à remercier aussi l'ensemble des acteurs du groupe SISyPHe (Sécurité Industrielle et Systèmes Particulaires Hétérogènes), permanents comme post-docs, masters ou doctorants : merci à Jean-François, Jean-Christophe, Olivier, Laurent, Laurent (bis), Nathalie, Véronique, Sébastien, Alexis, Mamadou, Nadia, Felipe, Benoît, Xavier… en espérant n'oublier personne.

Le tableau ne saurait être complet sans associer à ce travail le service EMI et l'ensemble des magiciens de l'atelier, pour lesquels rien ne semble impossible dès lors qu'il s'agit d'extruder, usiner, souder, laminer…. Merci pour toutes les solutions apportées.

Pour finir, un grand merci à mes parents d'avoir toujours été là, de m'avoir soutenu (et supporté) durant toutes ces années (cette fois, promis, c'est fini), et sans qui je ne serais rien. Merci à mes deux amours de petits frères. Et enfin, merci à toi mon cœur, ma douce Hélène, petit porte-bonheur personnel, future doctoresse qui portera bientôt mon nom….

A ma famille,
passée, présente et future…

Table des Matières

NOMENCLATURE **9**

INTRODUCTION **17**

CHAPITRE I - REVUE BIBLIOGRAPHIQUE **25**

1. Généralités **27**

2. Efficacité d'un filtre à fibres **29**

3. Efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne **31**
3.1. Modèles d'efficacité classiques 31
3.2. Théorie du rebond thermique 36
3.3. Etudes expérimentales menées depuis 1991 41

4. Efficacité unitaire de collecte par effets électrostatiques **46**

CHAPITRE II - MATERIEL ET METHODES **49**

1. Présentation du banc d'essai **51**
1.1. Principe de fonctionnement et protocole opératoire 51
1.2. Génération de nanoparticules 52
1.3. Sélection d'une taille de particules 54
1.4. Détection et comptage 60

2. Limites d'utilisation des appareils et artéfacts de mesures potentiels **61**
2.1. Efficacité de comptage du CNC 61
2.2. Modes de comptage du CNC 62
2.3. Fonction de transfert du DMA 63
2.4. Incidence de la nature du gaz porteur 66

3. Caractérisation des aérosols générés par le GFG-1000 ..... **67**

4. Limites dues à la géométrie du banc d'essai et au protocole opératoire **70**
4.1. Rapport Γ 70
4.2. Agglomération et dépôt de particules 72
4.3. Pertes totales 74
4.4. Perméance limite mesurable 77

5. Synthèse **77**

CHAPITRE III - EFFICACITE DES GRILLES **81**

1. Présentation des médias **83**

2. Filtration d'aérosols globalement neutres **84**
2.1. Cas des grilles inox 84
2.2. Cas des grilles synthétiques 86

3. Filtration d'aérosols chargés **89**
3.1. Cas des grilles inox 89
3.2. Cas des grilles synthétiques 91

4. Retour sur la filtration d'aérosols globalement neutres **96**

5. Synthèse **99**

6. Retour sur la théorie du rebond thermique **99**

CHAPITRE IV - EFFICACITE DES FILTRES NON-TISSES **109**

1. Présentation des médias **111**

2. De la filtration d'aérosols globalement neutres à celle de particules non-chargées **113**
2.1. Filtration d'aérosols globalement neutres 113
2.2. Filtration de particules non-chargées 115

3. Filtration d'aérosols chargés **117**
3.1. Cas du filtre Reemay R2033 117
3.2. Cas des filtres A320 et AX1923 125

4. Synthèse **129**

5. Perméance au sein de médias percés **130**
5.1. Modélisation 130
5.2. Résultats expérimentaux 135
5.3. Régime de lit et régime de fuite 139

CHAPITRE V - EFFICACITE DES LITS GRANULAIRES **143**

1. Présentation des médias **145**

2. Efficacité théorique d'un lit de billes dans le domaine diffusionnel **145**

3. Capture des nanoparticules par des billes d'acier **147**

4. Capture des nanoparticules par une zéolithe commerciale **149**

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES **153**

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES **159**

ANNEXES **173**

Nomenclature

Majuscules

A	constante d'Hamaker	(J)
$A_{éq}$	constante d'Hamaker équivalente	(J)
C	concentration en nombre de particules	(m^{-3})
C_0	concentration en nombre de particules en entrée de canalisation	(m^{-3})
C_{aval}	concentration en nombre de particules à l'aval du média considéré	(m^{-3})
C_{amont}	concentration en nombre de particules à l'amont du média considéré	(m^{-3})
C_d et C_d'	facteurs correctifs dans les modèles théoriques d'efficacité unitaire	(-)
C_{eff}	concentration en nombre de particules effective en sortie de générateur	(m^{-3})
C_{mes}	concentration en nombre de particules mesurée par le CNC	(m^{-3})
Cu	coefficient de Cunningham	(-)
D	coefficient de diffusion de la particule	($m^2.s^{-1}$)
E	efficacité de collecte	(-)
Eb	efficacité de collecte du matelas fibreux	(-)
E_T	efficacité de transport	(-)
E_{ad}	énergie d'adhésion	(J)
E_i	énergie de contact fibre-particule avant impact	(J)
E_r	énergie de contact fibre-particule après impact	(J)
F	fréquence des étincelles du générateur Palas® GFG-1000	(Hz)
H_{La}	facteur hydrodynamique de Lamb	(-)
H_{Ha}	facteur hydrodynamique de Happel	(-)
H_{Ku}	facteur hydrodynamique de Kuwabara	(-)
H_{FAN}	facteur hydrodynamique issu du modèle FAN	(-)
K	résistance à l'écoulement	(m^{-1})
K'	résistance à l'écoulement du filtre percé	(m^{-1})
K_s	constante élastique du matériau constituant la fibre	($m^2.N^{-1}$)
K_p	constante élastique du matériau constituant la particule	($m^2.N^{-1}$)
KE_i	énergie cinétique de la particule avant impact avec la fibre	(J)
KE_r	énergie cinétique de la particule après impact avec la fibre	(J)
Kn_p	nombre de Knudsen relatif à la particule	(-)
Kn_f	nombre de Knudsen relatif à la fibre	(-)
L	pertes énergétiques dues à l'impact fibre-particule	(J)
L_{DMA}	longueur du DMA	(m)
L_b	longueur du lit de billes	(m)
L_c	longueur de canalisation	(m)
N	nombre de charges élémentaires portées par la particule	(-)
N_{0q}	paramètre adimensionnel lié à la force image	(-)
N_{q0}	paramètre adimensionnel lié à la force de polarisation	(-)
N_{qq}	paramètre adimensionnel lié aux forces coulombiennes	(-)
P	perméance	(-)
P_b	perméance du matelas fibreux	(-)
P_f	perméance du filtre percé	(-)
P_h	perméance de la fuite	(-)
P_r	pression de référence	(Pa)
P^*	perméance de l'ensemble filtre + porte-filtre	(-)
P_{exp}	perméance mesurée pour des aérosols globalement neutres	(-)
P_{lim}	valeur limite de perméance mesurable	(-)
$P_{théo}$	perméance théorique	(-)
$P(N)$	perméance de particules portant N charges élémentaires	(-)

$P(N)_{exp}$	perméance expérimentale de particules portant N charges élémentaires	(-)
P_{Ar}	pression de détente de l'argon réglée sur le Palas® GFG-1000	(Pa)
P_{air}	pression de détente de l'air réglée sur le Palas® GFG-1000	(Pa)
Pe	nombre adimensionnel de Péclet	(-)
Pe_b	nombre adimensionnel de Péclet calculé pour le seul matelas fibreux d'un filtre percé	(-)
Q	débit d'aérosol	$(m^3.s^{-1})$
Q_{air}	débit d'air sec et parfaitement filtré	$(m^3.s^{-1})$
Q_b	débit traversant le lit de fibres	$(m^3.s^{-1})$
Q_f	débit de filtration	$(m^3.s^{-1})$
Q_h	débit de fuite	$(m^3.s^{-1})$
R	rapport entre V_{im} et V_{cr}	(-)
R*	rayon de contact équivalent	(m)
Re	nombre de Reynolds	(-)
Re_f	nombre de Reynolds relatif à la fibre	(-)
S	constante de Sutherland	(K)
S_b	section de fibres	(m^2)
S_f	section de filtre	(m^2)
S_h	section de fuite	(m^2)
T	température	(K)
T_r	température de référence	(K)
Ta	paramètre de Tabor	(-)
U	vitesse de filtration en fût vide	$(m.s^{-1})$
U_b	vitesse de filtration au travers du matelas fibreux	$(m.s^{-1})$
U_f	vitesse de filtration globale au travers du filtre percé	$(m.s^{-1})$
U_h	vitesse des particules au travers de la fuite	$(m.s^{-1})$
V	vitesse de la particule	$(m.s^{-1})$
V_{cr}	vitesse critique d'impaction	$(m.s^{-1})$
V_{im}	vitesse moyenne d'impaction	$(m.s^{-1})$
V_S	vitesse adimensionnelle d'une particule chargée soumise à un champ électrique	(-)
W	différence de potentiel appliquée entre les électrodes du DMA	(V)
X	rapport entre V et V_{cr}	(-)
Y	module d'Young	(Pa)
Y*	module élastique équivalent	(Pa)
Z	épaisseur du filtre	(m)
Z_p	mobilité électrique de la particule	$(m^2.V^{-1}.s^{-1})$
Z_p^*	consigne de mobilité électrique fixée au DMA	$(m^2.V^{-1}.s^{-1})$

Minuscules

a, b et c	constantes expérimentales permettant le calcul de Cu	(-)
b(N)	fonction de calcul des proportions g(N) de particules	(-)
d	diamètre de la surface de contact du modèle JKR	(m)
d_b	diamètre de billes	(m)
d_c	diamètre de canalisation	(m)
d_f	diamètre de fibres	(m)
d_p	diamètre de particule	(m)
$d_{p,X}$	diamètre de particule critique pour lequel R = 1	(m)

d_p^*	diamètre de particule sélectionné au DMA	(m)
d_z	diamètre des billes de zéolithe	(m)
$d_{z,inf}$	diamètre inférieur des billes de zéolithe	(m)
$d_{z,sup}$	diamètre supérieur des billes de zéolithe	(m)
dz	épaisseur unitaire	(m)
dA	somme des surfaces projetées des fibres	(m^2)
dC	concentration en nombre de particules	(m^{-3})
dL	longueur de fibres	(m)
dN/dt	flux de particules	(s^{-1})
dV_f	volume de fibres	(m^3)
e	charge élémentaire ($1,6 \times 10^{-19}$)	(C)
f	valeur du potentiostat réglée sur le Palas® GFG-1000	(-)
g(N)	probabilité d'une particule d'atteindre l'état de charge N	(-)
h	hauteur de la fonction de transfert du DMA	(-)
k	constante de Boltzmann	($J.K^{-1}$)
ℓ	coefficient de restitution	(-)
m_{app}	masse apparente du lit de billes	(kg)
m_p	masse de la particule	(kg)
n	nombre de particules	(-)
p	puissance à laquelle est élevée N_{0q}	(-)
q	charge portée par la particule	(C)
q_a	débit d'échantillonnage en aérosol	($m^3.s^{-1}$)
q_{ex}	débit d'excès au sein du DMA	($m^3.s^{-1}$)
q_m	débit d'aérosol monodispersé en sortie de DMA	($m^3.s^{-1}$)
q_{sh}	débit d'accompagnement au sein du DMA	($m^3.s^{-1}$)
q_{CNC}	débit d'aérosol vers le CNC	($m^3.s^{-1}$)
r_1	rayon de l'électrode centrale du DMA	(m)
r_2	rayon de l'électrode périphérique du DMA	(m)
r_p	rayon de particule	(m)
t	temps	(s)
w	demi-largeur de la fonction de transfert du DMA	(-)
z_0	distance minimale entre la fibre et la particule	(m)

Lettres grecques

α	compacité du filtre	(-)
β	terme adimensionnel des équations de Gormley et Kennedy	(-)
γ	constante	(-)
δ	dimension fractale des agglomérats	(-)
ε	efficacité d'adhésion	(-)
ε_b	porosité des lits de billes	(-)
ε_f	constante diélectrique de la fibre	(-)
ε_p	constante diélectrique de la particule	(-)
ε_0	permittivité de l'air	($F.m^{-1}$)
ε_{CNC}	efficacité de comptage du CNC	(-)
λ	charge linéique des fibres	($C.m^{-1}$)
λ_g	libre parcours moyen des molécules de gaz	(m)
η	efficacité unitaire de fibre	(-)
η_0	efficacité unitaire de collecte pour des particules non-chargées	(-)

η_b	efficacité unitaire de collecte du matelas fibreux	(-)
η_d	efficacité unitaire de collecte par diffusion	(-)
$\eta_{élec}$	efficacité unitaire de collecte par force électrostatique	(-)
η_{exp}	efficacité unitaire de fibre expérimentale	(-)
η_{0q}	efficacité unitaire de collecte par force image	(-)
η_{q0}	efficacité unitaire de collecte par force de polarisation	(-)
η_{qq}	efficacité unitaire de collecte par force coulombienne	(-)
ρ_{acier}	masse volumique des billes d'acier	($kg.m^{-3}$)
ρ_p	masse volumique de la particule	($kg.m^{-3}$)
ρ_g	masse volumique du gaz	($kg.m^{-3}$)
ρ_z	masse volumique des billes de zéolithe testées	($kg.m^{-3}$)
μ_g	viscosité dynamique du gaz	(Pa.s)
λ	densité de charge linéique	(C.m)
λ_g	libre parcours moyen du gaz porteur	(m)
σ	densité de charges surfacique	($C.m^{-2}$)
$\sigma_{p,s}$	énergie spécifique d'adhésion	($J.m^{-2}$)
$\sigma_{p,s,eq}$	énergie spécifique d'adhésion équivalente	($J.m^{-2}$)
$\sigma_{p,s,min}$	valeur minimale de l'énergie spécifique d'adhésion	($J.m^{-2}$)
τ	coefficient intervenant dans le modèle de Kirsch et Stechkina (1978)	(-)
υ	coefficient de Poisson	(-)
ω	ouverture de maille des grilles	(m)
ΔP_b	perte de charge du matelas fibreux	(Pa)
ΔP_f	perte de charge du filtre	(Pa)
$\Delta P_{f,0}$	perte de charge du filtre non percé	(Pa)
ΔP_h	perte de charge de la perforation	(Pa)
ΔZ_p	bande-passante du DMA	($m^2.V^{-1}.s^{-1}$)
φ	paramètre adimensionnel déterminant le régime de filtration	(-)
Φ_P	coefficient de perméance	(-)
Φ_Q	coefficient de débit	(-)
Γ	« perméance » du système « double-conduite » vide	(-)

Introduction

« Le monde de demain sera nano ou ne sera pas ».

C'est du moins la conclusion à laquelle tend à aboutir bon nombre de rapports dédiés aux nanosciences et nanotechnologies [Arnall (2003), Luther (2004), Saxl (2005)]. En effet, si la définition précise de ces dernières reste délicate tant les domaines scientifiques couverts sont vastes et nombreux, leur essor est tel depuis la fin des années 90 que d'aucuns parlent déjà de « Révolution Industrielle du XXIème Siècle » [Keiper (2003), rapports de l'Interagency Working Group on Nanoscience, Engineering and Technology (2000), de la CMP Cientifica (2002), de la Fundación de la Innovación Bankinter (2006)]. Sans nécessairement adhérer à ce point de vue, force est de constater que le développement de tout ce qui a trait au nanométrique a été particulièrement spectaculaire ces dix dernières années. Pour s'en convaincre, il suffit de s'intéresser par exemple à l'évolution des investissements consentis par les différents gouvernements de la planète en matière de Recherche et Développement (figure 0-1). Quasiment égaux d'une région du monde à l'autre [il est à noter que les pays rassemblés sous l'intitulé « autres », parmi lesquels Chine, Corée et Inde, investissent autant que les Trois Grands que sont Europe, Etats-Unis et Japon], l'ensemble des fonds publics mis en jeu en 2005 a atteint près de 5 milliards de dollars, tandis que les estimations même les plus pessimistes tablent sur un marché global lié aux nanotechnologies de près de 1000 milliards de dollars d'ici à 2015 (pour environ 150 millions en 2005, soit une multiplication par un facteur 7 en 10 ans) [Hullmann (2006)].

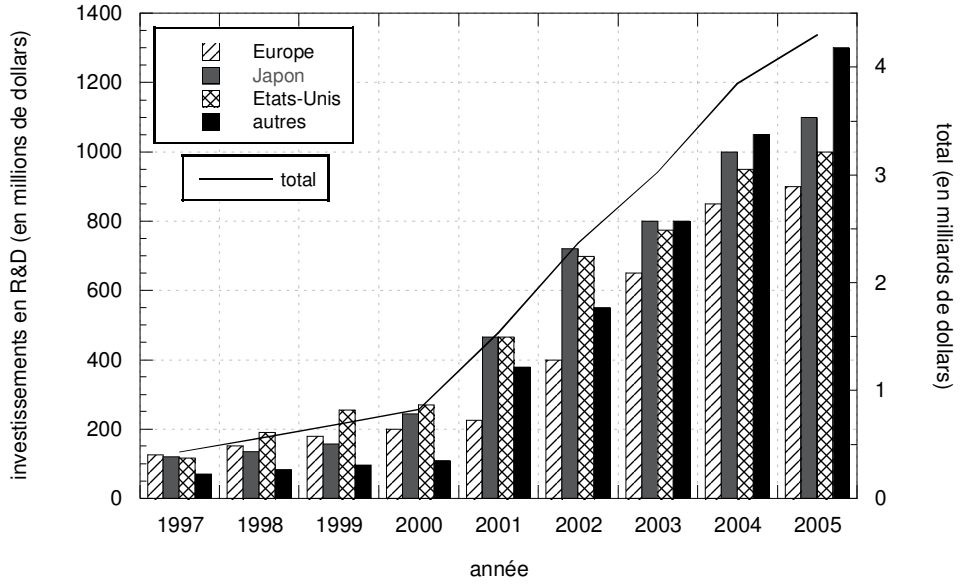


Figure 0-1 : Evolution des investissements gouvernementaux en Recherche et Développement liés aux nanosciences et nanotechnologies, depuis 1997 [Roco (2005)]

Enjeu financier, la maîtrise de l'infiniment petit est aussi pour beaucoup un enjeu stratégique, comme en atteste le nombre de brevets déposés dans ce secteur, qui n'a cessé de croître, de façon exponentielle, depuis 1987 (figure 0-2).

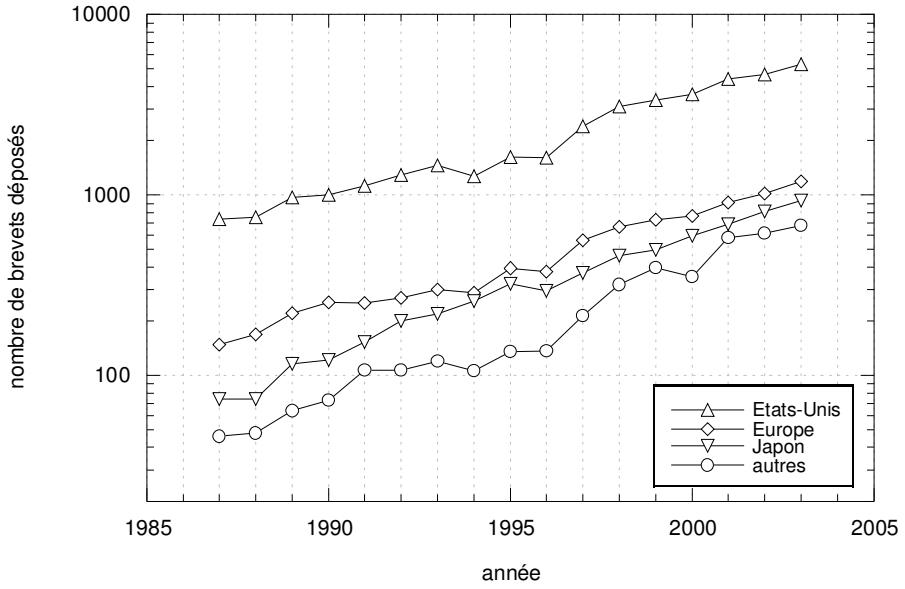


Figure 0-2 : Evolution du nombre de brevets déposés dans le secteur des nanotechnologies entre 1987 et 2003 [Huang et al. (2004)]

Outre ces considérations politiques et économiques, l'engouement général pour les nanotechnologies s'explique avant tout en raison des extraordinaires avancées techniques qu'elles laissent entrevoir [Pui et Chen (1997), Kostoff et al. (2007)], et des propriétés étonnantes que peuvent présenter les nanoparticules* manufacturées (par opposition aux nanoparticules d'origine naturelle, émises lors d'épisodes volcaniques par exemple). En effet, même si beaucoup de produits de notre vie quotidienne sont déjà pour partie composés de nanomatériaux, les applications envisagées grâce aux nanosciences et nanotechnologies vont bien au-delà de la seule fabrication de raquettes de tennis plus légères ou de crèmes solaires anti-UV transparentes [Gleiche et al. (2006), Sanguansri et Augustin (2006)]. En médecine par exemple, il est question de thérapie ciblée, via l'encapsulation de principes actifs au sein d'une membrane nanoporeuse faisant office de vecteur de médicament jusqu'aux cellules visées. En microélectronique, la fabrication de circuits intégrés est aujourd'hui limitée par les capacités de gravure par photolithographie ; l'électronique moléculaire ou le transistor à un électron apparaissent alors comme des alternatives qui permettraient d'outrepasser ces limites. Dans l'industrie agro-alimentaire, l'emploi de nanotraceurs est envisagé pour s'assurer de la fraîcheur et de la consommabilité des aliments périssables. Les nanoparticules affichent également des propriétés intéressantes pour la dépollution des sols (effets catalytiques accrus), le secteur de l'énergie (nouvelles cellules solaires) ou de l'optique (verres auto-nettoyants).

Toutefois, parallèlement à l'enthousiasme qui se dégage de toutes ces futures solutions nanos, la communauté scientifique, et les toxicologues en particulier, s'interrogent à propos de l'impact sur l'environnement et la santé qui pourrait être lié aux nanoparticules, dont les dimensions sont par ailleurs proches de celles des protéines ou des molécules d'ADN (figure 0-3) [Biswas et Wu (2005), Kreyling et al. (2004), Oberdörster et al. (2005), Borm et al. (2006), Renn et Roco (2006)].

* La norme ASTM E2456 (2006) définit une nanoparticule comme une particule ultrafine (les deux dénominations sont donc distinctes) ayant deux ou trois de ses dimensions comprises entre 1 et 100 nm, et présentant ou pas une propriété spécifique due à sa taille. Il est toutefois admis que cette description peut prêter à controverses. Dans ce rapport, l'expression « particules ultrafines » sera néanmoins utilisée comme synonyme.

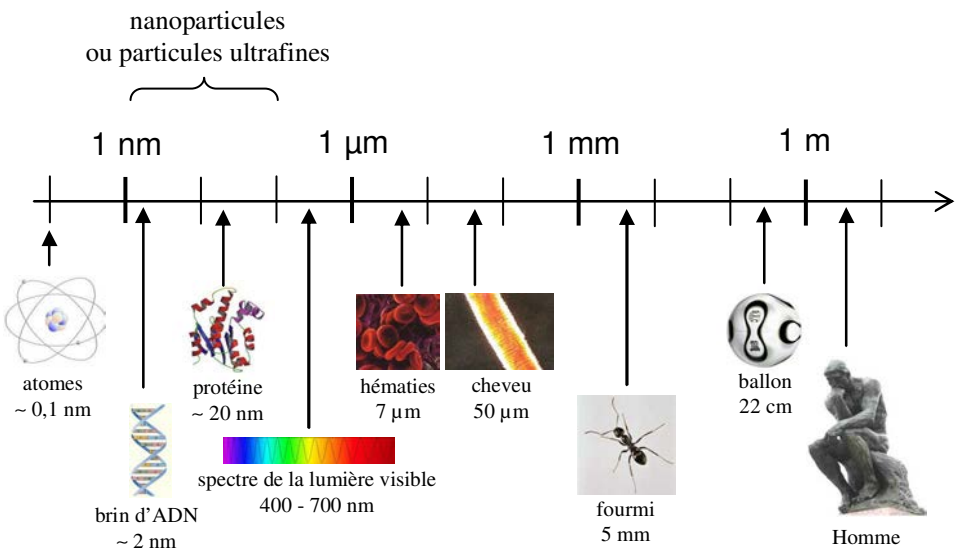


Figure 0-3 : Nanoparticules et échelle de taille

Le risque serait d'autant plus élevé, en cas de toxicité [celle-ci fait en effet débat ; nous renvoyons ici le lecteur vers l'ouvrage d'Hervé-Bazin (2007)], que les voies d'exposition possibles sont nombreuses, parmi lesquelles l'inhalation. Or, concernant cette dernière, et comme illustré figure 0-4, les particules ultrafines en suspension dans l'air possèdent une probabilité de dépôt importante dans les voies aériennes de l'organisme, et notamment au plus profond des poumons, dans les alvéoles, qui pourraient alors constituer une zone de passage vers le système sanguin (l'épithélium alvéolaire étant en contact très étroit avec les capillaires pulmonaires, et les nanoparticules suspectées de pouvoir franchir facilement les barrières biologiques).

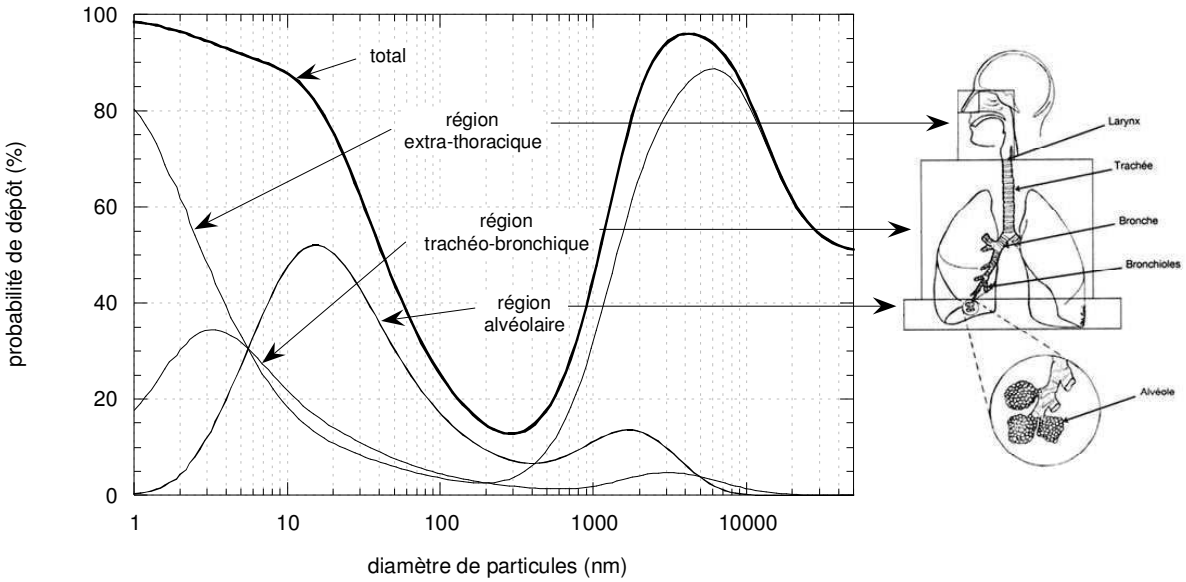


Figure 0-4 : Probabilité de dépôt d'un aérosol au sein de l'arbre pulmonaire [Witschger et Fabriès (2005)]

Aussi, en vue d'une bonne gestion des risques, et compte tenu de l'enjeu de santé public que cela pourrait représenter (le nombre de travailleurs concernés s'estime à près de 2 millions d'ici à 2010 [Hullmann (2006)]), s'assurer que les moyens de protection couramment utilisés, comme les filtres à fibres, sont encore efficaces dans le domaine nanométrique apparaît de toute première importance.

Selon les approches classiques en filtration, un aérosol inférieur à 100 nm est d'autant plus facilement arrêté que son diamètre de particules est petit, en raison de la diffusion brownienne de ces dernières. Or, comme nous le verrons dans le **chapitre I** de ce mémoire (revue bibliographique), ce résultat a été remis en cause aux débuts des années 90 par une théorie appelée « rebond thermique ». Selon cette théorie, les particules inférieures à 10 nm seraient susceptibles de ne pas adhérer aux fibres du filtre, et ne seraient donc plus collectées efficacement. Le doute est d'autant plus permis que sur le plan expérimental, les différentes études de la littérature aboutissent à des résultats parfois contradictoires. Face à ce constat et grâce aux moyens de l'INRS et du LSGC, nous avons mis en place un banc d'essai, décrit en détails au **chapitre II,** permettant de tester l'efficacité de différents types de médias vis-à-vis d'aérosols solides entre 4 et 80 nm de diamètre, pour différentes vitesses de filtration.
Complémentaire aux études déjà menées jusqu'à présent par les auteurs répertoriés au **chapitre I**, ce travail a essentiellement pour but de confirmer ou infirmer l'existence d'une remontée de perméance en dessous d'un certain diamètre, en raison d'un rebond thermique des particules ou d'un autre phénomène physique, et, par suite, de préciser quels mécanismes interviennent dans la capture des nanoparticules selon les cas rencontrés (nature chimique des particules, fibres métalliques ou synthétiques, état de charge de l'aérosol, …). Les résultats obtenus vont aussi permettre de vérifier la validité des différents modèles mathématiques existants dans la littérature pour prédire l'efficacité des filtres dans le domaine ultrafin. En cas de manque de précision de ces derniers, de nouveaux modèles décrivant plus fidèlement cette efficacité seront développés, que le média filtrant soit une simple grille (**chapitre III**), un non-tissé (**chapitre IV**) ou encore un lit granulaire (**chapitre V**).
L'un des risques majeurs en filtration, lors de l'utilisation d'un masque par exemple, étant la présence de fuites (en raison d'un défaut de fabrication ou, ce qui est plus fréquent pour les masques, d'un mauvais positionnement sur le visage – « faceseal leaks » en anglais), nous nous sommes également intéressés aux performances de filtres en fibres de verre sous fonctionnement accidentel, en perforant volontairement ces derniers à l'aide d'aiguilles calibrées. Les résultats de cette étude sont exposés au **chapitre IV**.
Enfin, nous terminerons ce rapport par une **conclusion** précisant les différentes perspectives et points à développer, suite aux travaux présentés, afin d'améliorer encore la compréhension de la filtration des aérosols nanométriques.

Chapitre I
-
Revue Bibliographique

1. Généralités

Parce qu'ils sont relativement simples à mettre en oeuvre tout en présentant un rapport coût/efficacité avantageux, les filtres à fibres figurent parmi les procédés de séparation gaz/particules les plus répandus. Pourtant, malgré cette utilisation massive, leur principe de fonctionnement est souvent mal connu, et beaucoup ne voit les filtres que comme de simples tamis. Or, fort heureusement, la capture d'un aérosol par un filtre à fibres va bien au-delà d'un simple problème de taille d'ouverture du réseau fibreux. Ainsi, une particule plus petite que la distance inter-fibres possédera malgré tout une certaine probabilité, pouvant se révéler importante, d'être captée par le filtre. Ce constat trouve son explication dans le fait que plusieurs mécanismes entrent en jeu, parfois simultanément, dans le processus de filtration. Si l'on exclut la gravité et d'éventuelles forces électrostatiques, vont intervenir, selon la taille des particules, les phénomènes d'impaction, d'interception et de diffusion brownienne. L'efficacité totale d'un filtre va résulter de ces trois principaux mécanismes, comme illustré figure I-1.

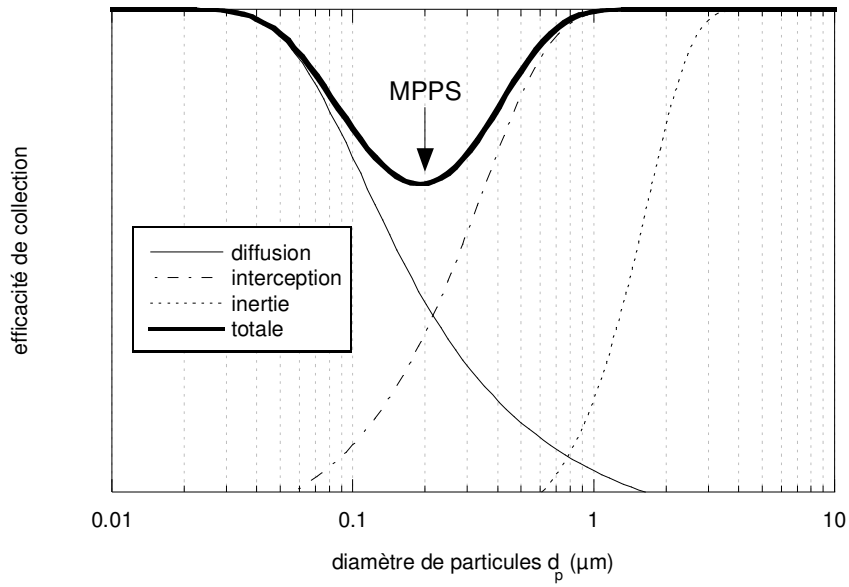


Figure I-1 : Allure de l'efficacité d'un média fibreux selon le diamètre de particules filtré

Le mécanisme d'impaction inertielle ne concerne que les plus grosses particules, d'un diamètre d_p supérieur à 1 micromètre environ (dépend de la masse volumique des particules). En raison d'une force d'inertie trop importante, celles-ci ne peuvent suivre les lignes de courant du flux d'air contournant les fibres du filtre, et viennent directement s'impacter sur ces dernières. Le phénomène d'interception intervient pour des particules plus petites, typiquement de l'ordre de quelques dixièmes de micromètres ; celles-ci seront collectées si elles suivent une ligne de courant s'approchant d'une fibre à une distance inférieure à leur rayon r_p (figure I-2).

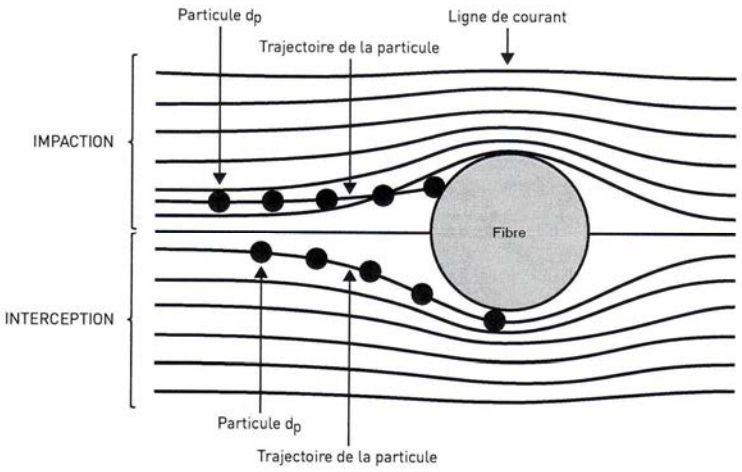


Figure I-2 : Collecte d'une particule par impaction et interception

Le mécanisme de capture qui nous intéresse plus particulièrement dans cette étude est la diffusion brownienne. Celle-ci affecte les particules les plus fines, en-dessous de 100 nm. Sous l'effet de l'agitation des molécules du gaz porteur et des chocs qui en résultent, ces nanoparticules vont se voir animées d'un mouvement aléatoire, dit brownien (en référence à Robert Brown, qui fut l'un des premiers à observer un tel phénomène, en 1827, lors de l'étude de pollen en suspension dans l'eau). Par conséquent, les particules sont susceptibles de venir « d'elles-mêmes » au contact du filtre, et ainsi êtres collectées, même si leurs lignes de courant originelles ne desservaient pas les environs d'une fibre (figure I-3).

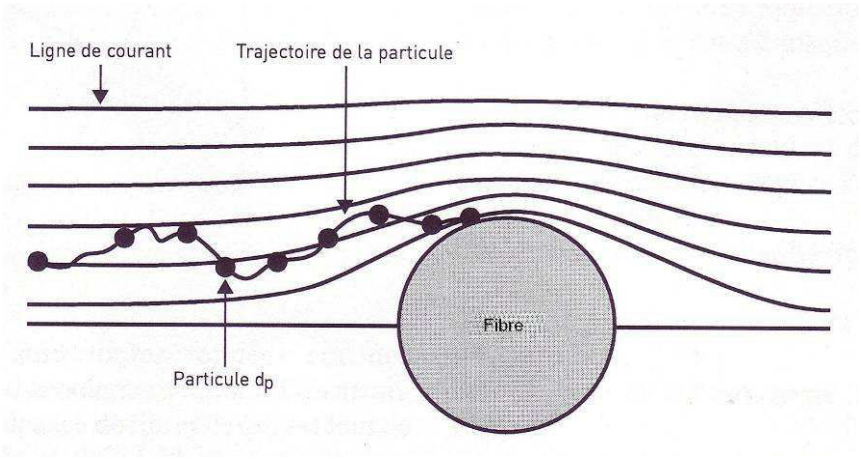


Figure I-3 : Collecte d'une particule par diffusion brownienne

Comme on peut le voir sur la figure I-1, le phénomène de diffusion brownienne est d'autant plus important que le diamètre de l'aérosol diminue. Ceci explique pourquoi la plupart des filtres présente un minimum d'efficacité, appelé MPPS (pour Most Penetrating Particle Size) aux alentours de 0,1 à 0,5 µm. Des particules de cette taille sont trop grosses pour être efficacement piégées par diffusion, et encore trop fines pour que l'interception et l'impaction soient significatives. Il en découle l'observation, de prime abord paradoxale, qu'un filtre arrêtera a priori plus facilement une petite particule de 10 nm qu'une « grosse » de 200 nm. Nous aborderons plus en détails la capture par diffusion brownienne dans la partie 3.

2. Efficacité d'un filtre à fibres

A partir d'un bilan matière relativement simple, il est possible d'exprimer théoriquement l'efficacité E d'un filtre à partir de ses seules propriétés intrinsèques, comme son épaisseur Z ou son diamètre de fibre d_f par exemple, et des conditions opératoires du système [vitesse de filtration U, concentration en particules en amont (C_{amont}) et en aval (C_{aval})]. Ainsi, considérons un élément de filtre d'épaisseur dz et de section S_f (figure I-4) :

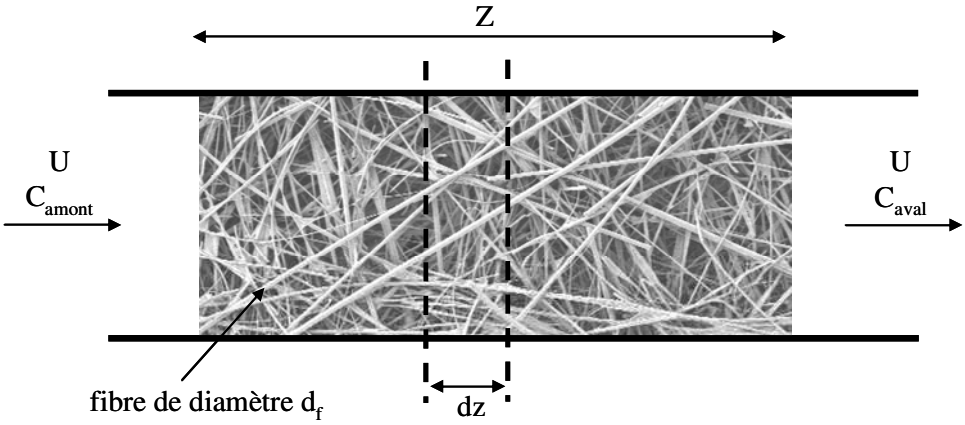


Figure I-4 : Schéma d'un filtre à fibres

Le volume dV_f de fibres dans cet élément peut être déterminé par :

$$dV_f = \alpha\, S_f\, dz \tag{I-1}$$

avec α, la compacité du filtre. D'autre part, dV_f est relié à la longueur totale dL de fibres au sein de l'élément, soit :

$$dV_f = \frac{\pi\, d_f^2}{4} dL \tag{I-2}$$

En supposant que l'ensemble des fibres du filtre est placé perpendiculairement à l'écoulement moyen de l'aérosol, il découle des équations (I-1) et (I-2) que la somme dA des surfaces projetées par les fibres de l'élément d'épaisseur dz est égale à :

$$dA = d_f\, dL = \frac{4\,\alpha\, S_f}{\pi\, d_f} dz \tag{I-3}$$

Le filtre étant constitué de fibres, il semble évident que l'efficacité du filtre est étroitement liée à celle des fibres qui le constituent. Si l'on définit η comme l'efficacité unitaire de collecte d'une fibre, alors le flux de particules dn/dt collecté par l'élément considéré s'écrit :

$$\frac{dn}{dt} = \eta\, \frac{U}{(1-\alpha)} C\, dA = \eta \frac{4\,\alpha\, S_f\, U}{\pi\, d_f\, (1-\alpha)} C\, dz \tag{I-4}$$

avec C, la concentration en particules.

Le terme $(1-\alpha)$ de l'équation (I-4) provient du fait que U est ici définie comme la vitesse de l'aérosol en fût vide, et non comme la vitesse interstitielle des particules au sein du média. Certains auteurs utilisent directement cette dernière, ce qui conduit à la suppression de $(1-\alpha)$ dans l'expression (I-4). Toutefois, pour des valeurs de compacité faibles, ce qui est généralement le cas, la différence entre les deux approches est négligeable.

Le flux dn/dt peut également s'exprimer à partir du bilan en particules sur l'élément d'épaisseur dz, ce qui conduit à :

$$\frac{dn}{dt} = -\,U\,S_f\,dC \qquad \text{(I-5)}$$

In fine, la résolution de l'équation différentielle résultant de l'égalisation entre (I-4) et (I-5), par intégration sur l'ensemble de l'épaisseur Z du filtre, permet d'exprimer la perméance P de ce filtre, définie comme le rapport entre le flux de particules à l'aval et celui à l'amont :

$$P = \exp\left(-4\eta\frac{\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi d_f}\right) = \frac{C_{aval}}{C_{amont}} \qquad \text{(I-6)}$$

soit, en termes d'efficacité globale E :

$$E = 1 - \exp\left(-4\eta\frac{\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi d_f}\right) = 1 - P \qquad \text{(I-7)}$$

Ainsi, l'efficacité de filtration d'un filtre apparaît bien fonction de ses propriétés physiques, telles son épaisseur Z ou son diamètre de fibres d_f, et des conditions opératoires au travers de l'efficacité unitaire de collecte η, qui va dépendre des différents mécanismes intervenant dans la capture des particules. La plupart des auteurs s'accorde à considérer cette efficacité unitaire η comme la somme des efficacités liées à chaque mécanisme, supposés indépendants les uns des autres :

$$\eta = \Sigma\,\eta_j \qquad \text{(I-8)}$$

Néanmoins, un terme η_{dr} est parfois ajouté à l'équation (I-8) afin de tenir compte de l'interaction, particulièrement visible figure I-1, entre la diffusion et l'interception aux alentours de la MPPS :

$$\eta = \Sigma\,\eta_j + \eta_{dr} \qquad \text{(I-9)}$$

En l'absence de tout champ de force autre que celui de la gravité, le mécanisme de filtration le plus important pour les nanoparticules (diamètre inférieur à 100 nm) est la diffusion brownienne. Dès lors :

$$\eta = \eta_d \qquad \text{(I-10)}$$

avec η_d, l'efficacité unitaire de collecte de fibre par diffusion. Avant de développer davantage ce terme η_d, notons qu'une approche différente, abordée par Kasper et al. (1978), consiste à approximer, non plus l'efficacité unitaire, mais la perméance d'une fibre comme le produit des perméances liées à chacun des mécanismes :

$$P = \Pi\,P_j \qquad \text{(I-11)}$$

soit

$$\eta = 1 - \Pi\,(1 - \eta_j) \qquad \text{(I-12)}$$

Si $\eta_j << 1$ pour chacun des mécanismes de capture, l'équation (I-12) peut se réduire à (I-9). Pich (1987) fait toutefois remarquer qu'aucune des deux approches n'a de justification théorique.

3. Efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne

3.1. Modèles d'efficacité classiques

Quel que soit le mécanisme considéré, deux approches existent pour calculer l'efficacité unitaire de collecte. La première consiste à étudier numériquement la trajectoire des particules lors de leur écoulement autour des fibres du filtre. La plupart de ces derniers étant de structure non-uniforme et irrégulière, une telle opération s'avère rapidement complexe et nécessite de fortes puissances de calcul. Afin de simplifier la résolution des équations de Navier-Stokes, le filtre est généralement assimilé à un assemblage de cylindres de même diamètre, parallèles entre eux et perpendiculaires à l'écoulement moyen de l'aérosol. Chaque cylindre est alors perçu comme entouré par une enveloppe concentrique de fluide, appelé cellule, d'où le terme générique de modèle à cellules. En régime continu, les modèles de Lamb (1932), Happel (1959) et Kuwabara (1959) apparaissent comme les plus utilisés. Chacun de ces modèles fait alors intervenir, dans l'expression de la fonction de courant relative aux composantes de la vitesse, un facteur hydrodynamique H, dont les expressions sont données dans le tableau I-1 :

Tableau I-1: Expression du facteur hydrodynamique H selon différents auteurs

Auteur	Expression de H
Lamb (1932)	$H_{La} = 2 - \ln Re_f$ avec $Re_f = \dfrac{\rho_g U d_f}{\mu_g}$
Happel (1959)	$H_{Ha} = \dfrac{\alpha^2}{1+\alpha^2} - \dfrac{1}{2}\ln\alpha - \dfrac{1}{2}$
Kuwabara (1959)	$H_{Ku} = \alpha - \dfrac{1}{2}\ln\alpha - \dfrac{1}{4}\alpha^2 - \dfrac{3}{4}$

Un autre modèle fréquemment utilisé dans la littérature est le modèle FAN, développé par Kirsch et Fuchs (1968) afin de se rapprocher davantage des conditions d'écoulement réelles au sein d'un filtre. Pour ce faire, ce dernier est assimilé à une superposition aléatoire de grilles, constituée de cylindres parallèles et équidistants. L'expression du facteur hydrodynamique H est alors :

$$H_{FAN} = -\,0{,}5 \ln\alpha - 0{,}52 + 0{,}64\,\alpha + 1{,}43\,(1-\alpha)\,Kn_f \qquad \text{(I-13)}$$

avec Kn_f, le nombre de Knudsen relatif à la fibre, défini comme le rapport entre le libre parcours moyen λ_g des molécules du gaz porteur (environ égal à 65 nm pour l'air, à température et pression normales) et le rayon de la fibre.

La seconde approche, plus simple, consiste à corréler un modèle d'efficacité à partir de résultats expérimentaux, ou à ajuster un modèle existant au mieux de ces résultats. C'est notamment le cas du second modèle de Lee et Liu (1982) listé dans le tableau I-2 ; des modèles de Liu et Rubow (1990) et de Payet et al. (1992), faisant intervenir les facteurs correctifs C_d et C_d' permettant de tenir compte du glissement du fluide ; et du récent modèle de Wang et al. (2007), obtenu à partir des résultats empiriques de Kim et al. (2007) et Japuntich et al. (2006).

Tableau I-2 : Expressions de η_d selon différents auteurs

Auteurs	Expression de η_d
Langmuir (1942)	$1{,}7\ H_{La}^{-1/3}\ Pe^{-2/3}$
Natanson (1957)	$2{,}9\ H_{La}^{-1/3}\ Pe^{-2/3}$
Stechkina et Fuchs (1966)	$2{,}9\ H_{Ku}^{-1/3}\ Pe^{-2/3} + 0{,}624\ Pe^{-1}$
Kirsch et Fuchs (1968)	$2{,}7\ Pe^{-2/3}$
Davies (1973)	$1{,}5\ Pe^{-2/3}$
Kirsch et Stechkina (1978)	$3{,}2 \left(\frac{\tau\, Kn_f}{H_{Ku}}\right)^{1/2} Pe^{-1/2}$ avec τ, un coefficient proche de 1, dépendant de l'interaction gaz/fibre
Kirsch et Zhulanov (1978)	$2{,}7\ Pe^{-2/3}\ (1 + 0{,}39\ H_{FAN}^{-1/3}\ Pe^{1/3}\ Kn_f) + 0{,}624\ Pe^{-1}$
Lee et Liu (1982) [1]	$\eta_d = 2{,}6 \left[\frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}}\right]^{1/3} Pe^{-2/3}$
Lee et Liu (1982) [2]	$\eta_d = 1{,}6 \left[\frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}}\right]^{1/3} Pe^{-2/3}$
Rao et Faghri (1988) [1]	$\eta_d = 4{,}89 \left[\frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}}\right]^{0{,}54} Pe^{-0{,}92}$
Rao et Faghri (1988) [2]	$\eta_d = 1{,}8 \left[\frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}}\right]^{1/3} Pe^{-2/3}$
Liu et Rubow (1990)	$\eta_d = 1{,}6 \left[\frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}}\right]^{1/3} Pe^{-2/3}\, C_d$
Payet et al. (1992)	$\eta_d = 1{,}6 \left[\frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}}\right]^{1/3} Pe^{-2/3}\, C_d\, C_d'$
Wang et al. (2007)	$\eta_d = 0{,}84\ Pe^{-0{,}43}$

C_d et C_d' ont les expressions suivantes :

$$C_d = 1 + 0{,}388\,Kn_f \left[\frac{(1-\alpha)Pe}{H_{Ku}} \right]^{1/3} \tag{I-14}$$

et

$$C_d' = \left(1 + 1{,}6 \left[\frac{(1-\alpha)}{H_{Ku}} \right]^{1/3} Pe^{-2/3} C_d C_d' \right)^{-1} \tag{I-15}$$

Il est à noter que l'expression 2,7 $Pe^{-2/3}$ de Kirsch and Fuchs (1968) est souvent cité sous la référence Cheng et Yeh (1980), suite aux travaux de ces deux auteurs sur les batteries de diffusion. Hinds (1999), quant à lui, réduit cette relation à 2 $Pe^{-2/3}$.

Les modèles du tableau I-2 ont tous en commun de faire intervenir le nombre de Péclet Pe, généralement à la puissance –2/3. Ce paramètre adimensionnel est caractéristique du mécanisme de diffusion brownienne, puisqu'il compare le taux de transport par convection au taux de transport par diffusion :

$$Pe = \frac{d_f\,U}{D} \tag{I-16}$$

avec D, le coefficient de diffusion d'une particule sphérique de rayon r_p. Dans le domaine de Stokes-Cunningham [Renoux et Boulaud (1998)] :

$$D = \frac{kTCu}{6\pi\mu_g r_p} \tag{I-17}$$

où T est la température, k, la constante de Boltzmann (égale à $1{,}38.10^{-23}$ $J.K^{-1}$) et Cu, le coefficient de Cunningham. Celui-ci permet de tenir compte de la non-continuité du milieu lorsque la taille des particules est du même ordre de grandeur que λ_g, et s'exprime :

$$Cu = 1 + 2\frac{\lambda_g}{d_p}\left[a + b\exp\left(-\frac{d_p}{2\lambda_g} c \right) \right] \tag{I-18}$$

a, b et c sont des constantes déterminées expérimentalement, pour lesquelles différents jeux de valeurs ont été fournis par divers auteurs (tableau I-3). Nous retiendrons pour nos calculs celles de Kim et al. (2005), déterminées à l'aide d'un nano-DMA (voir chapitre II) et pour une gamme de nombres de Knudsen de particule Kn_p (rapport entre λ_g et r_p) similaires aux nôtres. Notons cependant que quelles que soient les constantes prises, les valeurs obtenues pour Cu sont très proches les unes des autres.

Tableau I-3 : Valeurs des constantes a, b et c de la relation (I-16)

Auteurs	a	b	c
Allen et Raabe (1982)[a]	1,155	0,471	0,596
Allen et Raabe (1985)	1,142	0,558	0,999
Buckley et Loyalka (1989)[a]	1,099	0,518	0,425
Rader (1990)[b]	1,207	0,440	0,780
Hutchins et al. (1995)	1,231	0,470	1,178
Renoux et Boulaud (1998)[a]	1,250	0,420	0,870
Kim et al. (2005)	1,165	0,483	0,997

[a] d'après les travaux de Millikan (1923)
[b] d'après les travaux de Ishida (1923)

A pression P et température T, le libre parcours moyen λ_g et la viscosité dynamique μ_g peuvent être calculés grâce aux formules suivantes [Allen et Raabe (1982), Willeke (1976)]:

$$\lambda_g = \lambda_r \left(\frac{T}{T_r}\right)\left(\frac{P_r}{P}\right)\left(\frac{1+\frac{S}{T_r}}{1+\frac{S}{T}}\right) \tag{I-19}$$

et

$$\mu_g = \mu_r \left(\frac{T}{T_r}\right)^{3/2}\left(\frac{T_r+S}{T+S}\right) \tag{I-20}$$

avec T_r et P_r, les température et pression de référence, respectivement égales à 296,15 K et 101,3 kPa. S est la constante de Sutherland. Pour l'air, S = 110,4 K, λ_r = 67,3 nm et $\mu_r = 1{,}85 \times 10^{-5}$ Pa.s.

A T_r et P_r, les évolutions de D et Cu en fonction de d_p et Kn_p sont tracées figure I-5. On remarque que les 2 termes augmentent significativement avec le nombre de Knudsen, autrement dit lorsque le diamètre de particules d_p diminue. Par définition, Cu tend vers 1 pour les plus grosses particules (supérieures à 0,1 µm).

L'efficacité unitaire de collecte par diffusion η_d peut donc à présent être estimée (figure I-6), en considérant par exemple un filtre de compacité α égale à 0,1, pour un diamètre de fibres de 5 µm. Afin de ne pas surcharger la figure I-6, seules les valeurs obtenues à partir des modèles du tableau I-2 les plus utilisés aujourd'hui ont été représentées. La vitesse de filtration U a été fixée à 5 $cm.s^{-1}$. Il est à remarquer que d'un point de vue strictement mathématique, l'efficacité unitaire de collecte peut être supérieure à 1. Seul le modèle de Payet et al. (1992) a été établi de manière à la faire tendre vers l'unité lorsque le nombre de Péclet diminue.

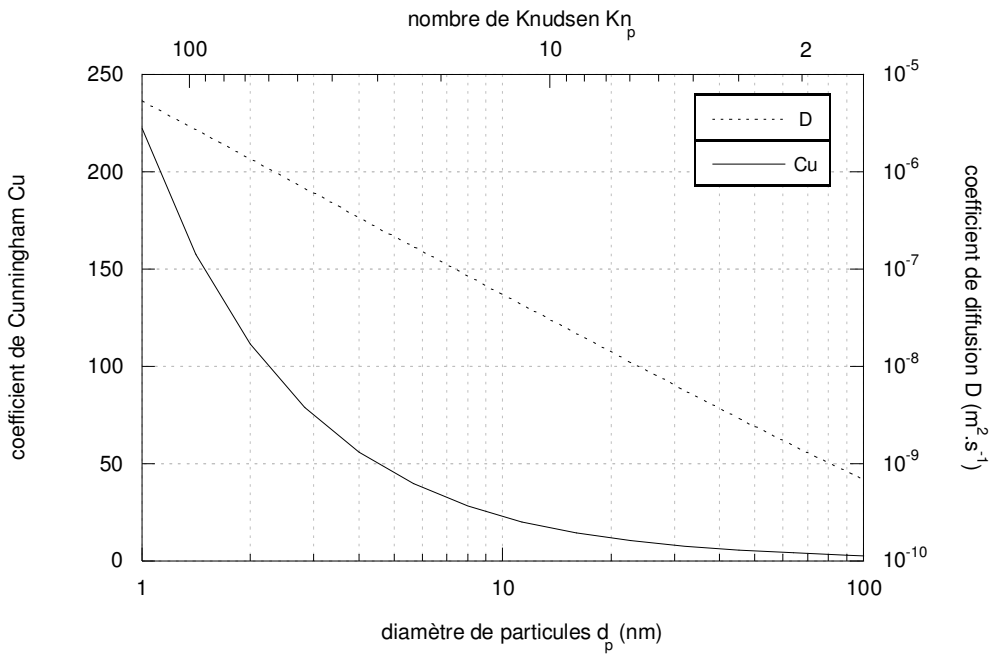


Figure I-5 : Evolution des coefficients de diffusion et de Cunningham en fonction du nombre de Knudsen de particule Kn_p et du diamètre de particules d_p, (T = 296,15 K et P = 101,3 kPa)

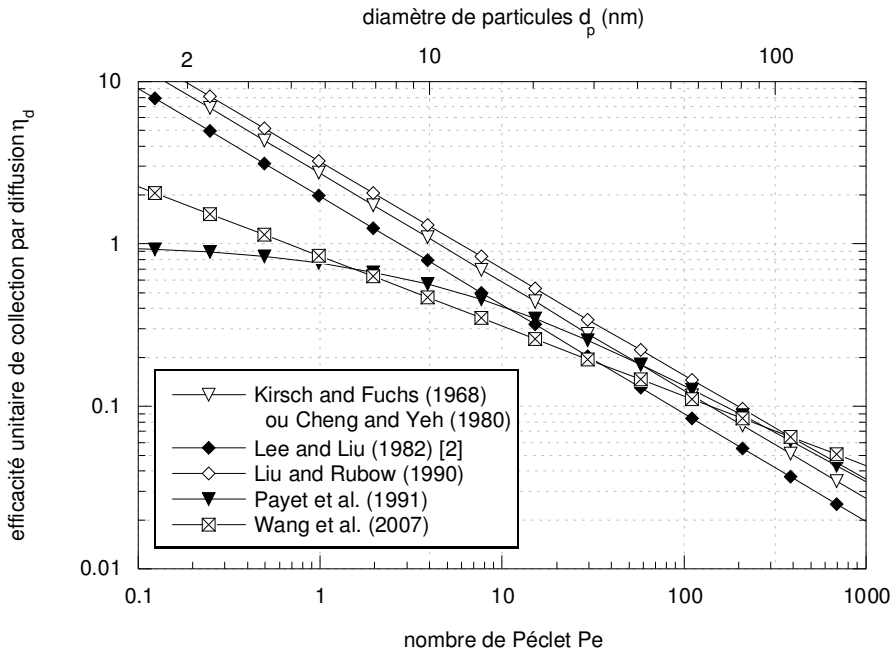


Figure I-6 : Efficacité unitaire de fibre η_d selon les modèles du tableau I-2 (d_f = 5 µm, α = 0,1 et U = 5 cm.s^{-1})

Dans tous les cas, η_d augmente lorsque le diamètre de particules diminue. Ainsi, comme énoncé précédemment, l'efficacité d'un média, dans le régime diffusionnel et selon les approches classiques en filtration, sera d'autant plus importante que la particule est petite. Deux auteurs ont toutefois remis en cause ce résultat au début des années 90 par l'introduction d'un phénomène susceptible d'affecter la collecte des aérosols les plus fins : le rebond thermique.

3.2. Théorie du rebond thermique

Une étude théorique menée par Wang and Kasper en 1991 aboutit en effet à la conclusion d'une hausse potentielle de la pénétration des aérosols en-dessous de 10 nm. Leurs calculs reposent sur le fait que le contact filtre-particule pourrait ne pas aboutir systématiquement à la collecte de cette dernière, contrairement à ce qui est classiquement supposé. Autrement dit, il existerait une probabilité d'adhésion ε de la particule sur la fibre : dès lors, η serait égal à $\varepsilon \times \eta_d$, et non plus uniquement η_d. Notons que Kops et al. (1986) proposaient déjà un développement mathématique pour un tel phénomène cinq ans plus tôt.

Si V_{cr} est définie comme la vitesse au-dessus de laquelle une particule aura une énergie cinétique supérieure à son énergie d'adhésion à la fibre E_{ad}, ε va s'exprimer comme le rapport entre le nombre de particules ayant une vitesse inférieure à V_{cr} (celles-ci seront collectées par le filtre) et le nombre total de particules de l'aérosol :

$$\varepsilon = \int_0^{V_{cr}} f(V)\,dV \Big/ \int_0^{\infty} f(V)\,dV \qquad \text{(I-21)}$$

Compte tenu de leur taille, il est coutume de considérer les aérosols nanométriques comme des molécules gazeuses, qui peuvent donc se voir appliquer les lois générales de la théorie cinétique des gaz. Ainsi, l'une des premières étapes de calcul de Wang et Kasper (1991) est de supposer que la distribution de vitesses des particules de masse m_p suit une loi de type Maxwell-Boltzmann :

$$f(V) = 4\pi V^2 \left[\frac{m_p}{2\pi kT}\right]^{3/2} \exp\left[\frac{-m_p V^2}{2kT}\right] \qquad \text{(I-22)}$$

soit, pour des particules sphériques, une vitesse moyenne d'impaction de l'aérosol sur les fibres du filtre égale à :

$$V_{im} = \left(\frac{48\,k\,T}{\pi^2 \rho_p d_p^3}\right)^{1/2} \qquad \text{(I-23)}$$

La seconde étape consiste à expliciter V_{cr}. Pour ce faire, Wang et Kasper réalisent un bilan énergétique sur l'impact fibre-particule, dont nous reprenons les notations :

$$KE_i + E_i = KE_r + E_r + L \qquad \text{(I-24)}$$

avec KE, l'énergie cinétique, E, l'énergie de contact particule-fibre et L, les pertes dues à l'impact. Les indices i et r sont pour 'avant' et 'après' contact respectivement. Compte tenu de ces définitions, la différence entre E_i et E_r correspond à l'énergie d'adhésion E_{ad}. La vitesse seuil V_{cr} à partir de laquelle aura lieu un éventuel rebond de la particule sur la fibre est la valeur au-dessus de laquelle KE_r devient non nulle :

$$V_{cr} = \left(\frac{12\, E_{ad}}{\pi \rho_p d_p^3 \ell^2} \right)^{1/2} \tag{I-25}$$

où ℓ désigne le coefficient de restitution, défini par :

$$\ell^2 = 1 - \frac{L}{KE_i} \tag{I-26}$$

En supposant que les pertes sont nulles (choc parfaitement élastique), ℓ est égal à l'unité. Wang et Kasper justifient cette hypothèse pour au moins deux raisons. La première est que le temps de contact entre la fibre et la particule serait trop court pour permettre une déformation plastique du système. La seconde est qu'elle permet tout simplement de ne pas avoir à déterminer L, ce qui nécessiterait de connaître précisément les champs de force s'appliquant entre la fibre et la particule. Si ce type de calcul est réalisable pour les macrosystèmes, il est en revanche beaucoup plus délicat pour des nanoparticules.
D'après l'équation (I-25), la détermination de E_{ad} va donc permettre de connaître V_{cr}. Pour cela, plusieurs théories co-existent dans la littérature [Israelachvili (1991)]. Wang et Kasper s'intéressent à deux d'entre elles, parmi les plus couramment utilisées : la théorie de Bradley-Hamaker [Bradley (1932), Hamaker (1937)], qui consiste à intégrer l'ensemble des interactions moléculaires du système particule-fibre, et le modèle JKR, pour Johnson, Kendall and Roberts [Johnson et al. (1971)]. Pour chacune de ces deux approches, Wang et Kasper proposent les expressions suivantes pour V_{cr} :

$$V_{cr/B\text{-}H} = \left[\frac{A}{\pi \rho_p z_0 d_p^2} \right]^{1/2} \tag{I-27}$$

et

$$V_{cr/JKR} = \left[\frac{3^7 \pi^4 \left(K_s + K_p \right)^2 \sigma_{p,s}^5}{\rho_p^3 d_p^5} \right]^{1/6} \tag{I-28}$$

avec A, la constante d'Hamaker et z_0, la distance minimale entre la particule et la fibre, habituellement prise égale à 0,4 nm ; $\sigma_{p,s}$ est l'énergie spécifique d'adhésion, et K_s et K_p sont les constantes élastiques, respectivement de la fibre et de la particule, calculables à partir du module d'Young Y et du coefficient de Poisson υ du matériau considéré :

$$K_{p/s} = \frac{\left(1 - \nu^2\right)}{\pi Y} \tag{I-29}$$

Une liste de constantes, tirée du papier de 1991, est donnée dans le tableau I-4.

Dans la suite de leur démonstration, Wang et Kasper préfèrent utiliser l'équation (I-28) plutôt que l'équation (I-27). Selon eux, l'un des inconvénients de l'approche microscopique de Bradley-Hamaker est qu'elle suppose que l'ensemble des forces d'adhésion ne s'applique qu'en un seul et même point, alors que le modèle JKR considère une surface de diamètre d, même en l'absence de déformation du système dû à l'impact :

$$d = \sqrt[3]{9\,\pi^2\,d_p^2\,\sigma_{p,s}\left(K_p + K_s\right)} \tag{I-30}$$

d est ensuite utilisé dans l'expression :

$$E_{ad} = \frac{\sigma_{p,s}\,\pi\,d^2}{4} \tag{I-31}$$

pour obtenir (I-28).
Wang et Kasper concèdent néanmoins que ces deux approches fournissent des résultats sensiblement équivalents pour V_{cr}, comme illustré figure I-7 (correspondant à la figure 1 de l'article de 1991), d'autant que l'incertitude sur les différentes constantes utilisées est grande : T = 293 K, ρ_p = 1000 kg.m^{-3}, $K_p + K_s = 5.10^{-11}$ m^2.N^{-1}, A = 10^{-20} J (et non 10^{-6} comme mentionné dans l'article de 1991) et $\sigma_{p,s}$ = 0,01 N.m^{-1}.

Tableau I-4 : Liste des constantes élastiques pour divers matériaux courants, d'après Wang et Kasper (1991)

matériau	**K_s** ou **K_p** (m^2.N^{-1})
acier	$1{,}39 \times 10^{-12}$
aluminium	$4{,}11 \times 10^{-12}$
argent	$3{,}31 \times 10^{-12}$
cuivre	$2{,}16 \times 10^{-12}$
nickel	$1{,}37 \times 10^{-12}$
titane	$2{,}34 \times 10^{-12}$
polystyrène	$8{,}86 \times 10^{-11}$

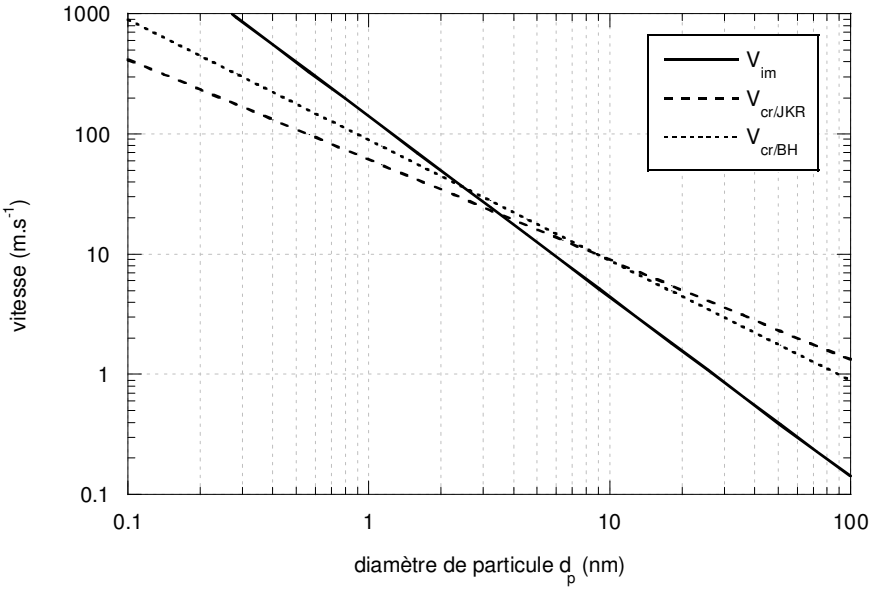


Figure I-7 : Comparaison entre la vitesse moyenne d'impaction V_{im} et les vitesses critiques V_{cr}
Correspond à la figure 1 de Wang et Kasper (1991)

Au vu de la figure I-7, les points d'intersection entre la vitesse d'impaction moyenne V_{im} et la vitesse critique V_{cr} calculée selon les deux méthodes sont très proches, aux alentours de 3 nm pour le système considéré. Au-dessus de cette valeur, les collisions particule-filtre entraînent à coup sûr la capture de la particule, la probabilité d'adhésion ε étant égale à 1, telle que considérée classiquement en filtration des aérosols. En-dessous, en revanche, l'énergie cinétique de certaines particules (qui résulte de l'agitation thermique du système gaz/particules, d'où le nom de rebond thermique) est supérieure à leur énergie d'adhésion à la surface d'une fibre. Ces particules sont donc susceptibles de ne pas être retenues, rebondir, ce qui, in fine, pourrait se traduire par une baisse d'efficacité du filtre….

L'intensité du phénomène, selon les hypothèses faites plus haut, sera d'autant plus importante que l'écart entre V_{im} et V_{cr} est grand, autrement dit que d_p est petit. En d'autres termes, ε va diminuer en même temps que la taille de l'aérosol. En introduisant R comme le rapport entre V_{im} et V_{cr}, et via le changement de variables $X = V/V_{cr}$, l'équation (I-21) devient :

$$\varepsilon = \int_0^{1/R} \left(\frac{32}{\pi^2} \right) X^2 \exp\left(-\frac{4X^2}{\pi} \right) dX \qquad \text{(I-32)}$$

et est alors estimable numériquement, par méthode des trapèzes ou via la méthode de Simpson. La figure I-8 montre l'évolution de ε en fonction de R.

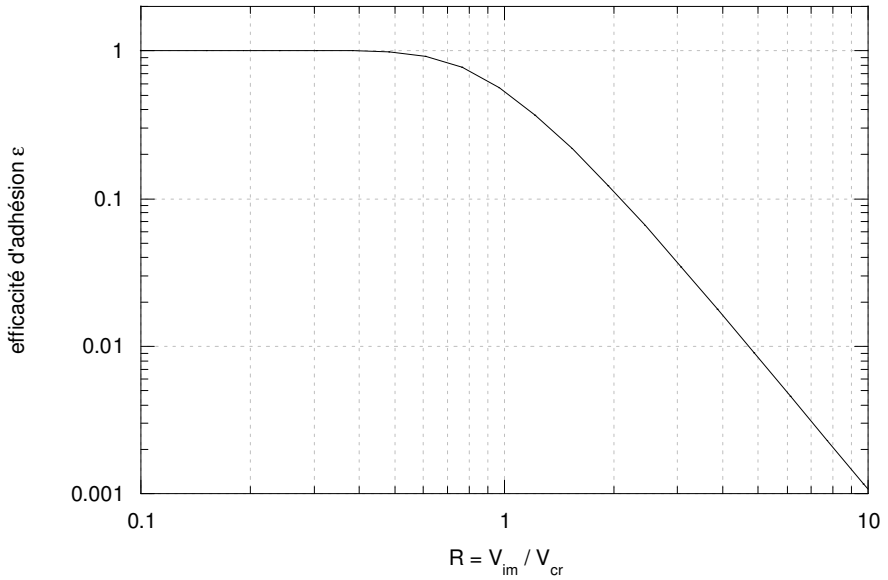


Figure I-8 : Efficacité d'adhésion ε en fonction de R,
en supposant une distribution de Maxwell-Boltzmann de la vitesse d'impaction des particules

Il est donc maintenant possible de représenter l'efficacité unitaire de fibre η en fonction du diamètre de particule d_p en tenant compte de l'efficacité d'adhésion ε : Wang et Kasper l'ont fait en considérant un système acier/polystyrène, et en utilisant le modèle [2] de Lee et Liu (1982) – cf. tableau I-2 – afin de calculer η_d (alors appelée efficacité de collision).
Leur figure 4 est reproduite figure I-9.

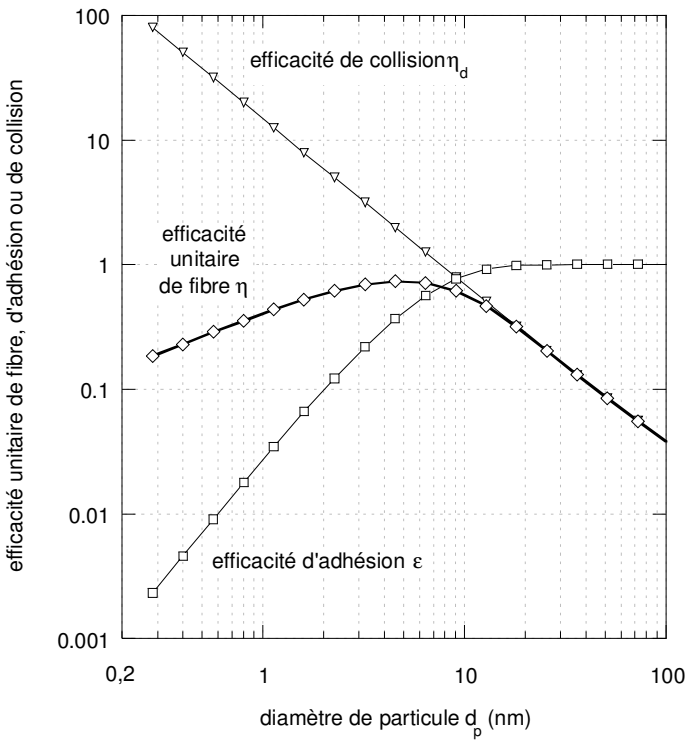


Figure I-9 : Efficacité de collision η_d, d'adhésion ε et unitaire de fibre η en fonction du diamètre de particules d_p
Correspond à la figure 4 de Wang et Kasper (1991)

Les valeurs prises pour les différents paramètres entrant en jeu sont les suivantes : $\alpha = 0{,}1$, $d_f = 5\ \mu m$, $U = 5\ cm.s^{-1}$, $K_p = 1{,}4 \times 10^{-12}\ m^2.N^{-1}$ (acier), $K_s = 9 \times 10^{-11}\ m^2.N^{-1}$ (polystyrène) et $\sigma_{p,s} = 0{,}005\ J.m^{-2}$ (l'article de 1991 fait mention de $0{,}01\ J.m^{-2}$, mais il est absolument impossible d'obtenir cette figure dans ces conditions, en particulier le triangle caractéristique dessiné par les trois courbes aux alentours de 10 nm), T = 293 K et P = 1 atm.

Ainsi, selon Wang et Kasper (1991), l'efficacité unitaire de fibre, qui augmenterait continûment avec la diminution de la taille des particules si ε était égal à 1, serait susceptible de diminuer en-dessous de 10 nm, et ce en raison d'une vitesse d'impact V_{im} supérieure à V_{cr}.

Si cette théorie est intéressante, et justifie à elle seule une étude expérimentale afin de vérifier l'existence (ou non) de cet effet « rebond », elle est en revanche sujette à vives controverses depuis son développement, comme nous le verrons au paragraphe suivant.
Au préalable, formulons dès à présent quelques remarques : tout d'abord, figure I-9, ε est inférieure à 1 dès 20 nm alors que η ne commence à diminuer qu'aux environs de 5 nm. Ceci est dû au fait que ε ne décroît plus vite que η_d augmente qu'à partir de ces 5 nm ($R > 1$). Pourtant, une fraction de particules est déjà susceptible de rebondir entre 5 et 20 nm. Il convient donc de garder à l'esprit que le rebond thermique, s'il existe, sera un phénomène progressif, et non brutal. Ainsi, d'un point de vue expérimental, en supposant qu'aucune diminution franche de l'efficacité ne soit mesurée, mais qu'un écart avec les valeurs théoriques déterminées classiquement soit néanmoins constaté pour les particules étudiées les plus fines, il sera délicat d'attribuer une telle situation à un « début » de rebond thermique ou à une simple incohérence des points expérimentaux avec le modèle utilisé.
Ensuite, et c'est là l'un des « inconvénients » majeurs de leur approche, Wang et Kasper ne suppose qu'un seul contact fibre-particule, ce qui, de leur propre aveu, est un cas fortement limitant en filtration. C'est l'une des raisons pour laquelle sur le plan expérimental, beaucoup

d'auteurs ont travaillé avec des grilles comme filtre-test, afin de s'affranchir au maximum d'un effet d'épaisseur du média qui pourrait masquer ce fameux rebond des particules, et la diminution d'efficacité qui en découle. En effet, rappelons que même si une seule couche de fibres n'est efficace qu'à quelques pourcents, 5 par exemple, un filtre à fibres, constitué de plusieurs couches, pourra finalement s'avérer très efficace [Brown (2001)] : la fraction d'aérosol pénétrant la première couche sera de 0,95. Ces 95 % rencontreront alors la seconde couche, qui en captera 5 autres pourcents, pour une fraction d'aérosol en amont de la troisième couche égale à $0{,}95^2$ de l'aérosol initial, et ainsi de suite, pour finalement atteindre $0{,}95^n$ derrière la $n^{ème}$ couche. En admettant que le filtre en contienne ne serait-ce que 10, celui-ci aura alors une efficacité globale de l'ordre de 40 %.
De même, l'ensemble des calculs de Wang et Kasper repose sur l'évaluation des forces de surface. Les nanoparticules étant précisément « plébiscitées » pour leurs propriétés de surface peu communes, on peut légitimement s'interroger sur la validité d'un tel développement et sur l'applicabilité des modèles JKR ou de Bradley-Hamaker. Ces derniers ne risquent-ils pas de sous-estimer les forces d'interaction entre une fibre et des particules dont la majorité des molécules constitutives se trouvent justement en surface (figure I-10) ? Enfin, sans aller jusqu'à parler d'effets quantiques, notons que selon certains auteurs, la notion même de diamètre de particules devient « discutable » en-dessous de 3 nm [Tammet (1995)].

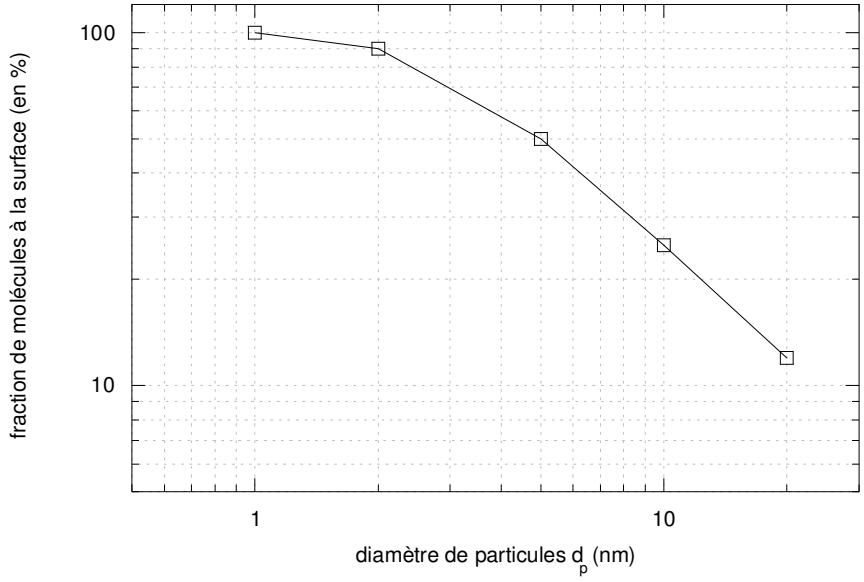


Figure I-10 : Proportion de molécules de 0,5 nm à la surface d'une particule de diamètre d_p (d'après Preining (1998))

3.3. Etudes expérimentales menées depuis 1991

Suite à la publication des travaux de Wang et Kasper (1991), de nombreuses études ont été entreprises afin de confirmer ou infirmer leurs conclusions. Plusieurs séries d'expériences avaient déjà été menées précédemment dans le domaine ultrafin, notamment celles ayant abouties aux modèles présentés dans le tableau I-2 [Cheng et Yeh (1980), Lee et Liu (1982), Liu et Rubow (1990)]. Citons également les résultats de Scheibel et Porstendörfer (1984) et de VanOsdell et al. (1990), ayant travaillé respectivement avec des grilles et des filtres à

fibres confrontés à des particules d'argent allant jusqu'à 3,5 et 4 nm de diamètre : dans les deux cas, aucune augmentation de la perméance lorsque d_p diminue n'avait été observée.

Otani et al. (1995) furent les premiers à se réclamer de l'observation d'un phénomène de rebond thermique. Bien que l'efficacité des médias testés ne soit pas remise en cause, les mesures réalisées montrent une hausse de la pénétration des particules inférieures à 2 nm au travers des canalisations, dont l'équation de Gormley et Kennedy (1949) (voir chapitre II) permet habituellement d'estimer la valeur. De même, l'année suivante, Skaptsov et al. (1996) n'ont observé aucune diminution de l'efficacité de grilles vis-à-vis de particules d'oxydes de tungstène et de molybdène, mais remarquent qu'en-dessous de 5 nm, la perméance des particules augmente fortement avec la température. Ce dernier point est un autre résultat de la théorie du rebond thermique, non abordé précédemment. En effet, à partir des équations (I-23) et (I-28), Wang et Kasper (1991) écrivent :

$$R = 1{,}92 \frac{(kT)^{1/2}}{\pi^{5/3}\left(K_p + K_s\right)^{1/3} \sigma_{p,s}^{5/6} d_p^{2/3}} \qquad \text{(I-33)}$$

En supposant que l'énergie spécifique d'adhésion $\sigma_{p,s}$ est inversement proportionnelle à la température, R devient proportionnelle à $T^{-4/3}$. Par suite, pour les grandes valeurs de R (supérieure à 2 d'après la figure I-8) :

$$\varepsilon \sim T^{-4} \qquad \text{(I-34)}$$

De même, l'efficacité de collision η_d (modèle [2] de Lee et Liu (1982)) va être fonction de T au travers du coefficient de diffusion D de la particule. Selon l'article de 1991, en supposant que la viscosité du gaz μ_g varie en racine carrée de T :

$$Pe \sim T^{-1/2} \qquad \text{(I-35)}$$

$$\eta_d \sim Pe^{-2/3} \sim T^{1/3} \qquad \text{(I-36)}$$

et donc :

$$\eta = \varepsilon \times \eta_d \sim T^{-11/3} \qquad \text{(I-37)}$$

Ainsi, en « régime » de rebond thermique, l'efficacité du filtre diminuerait lorsque la température T augmente, c'est pourquoi Skaptsov et al. (1996) attribuent leurs observations à ce phénomène. La même année, Wang (1996) validera ses calculs à partir des résultats de Ichitsubo et al. (1996) portant sur l'efficacité de grilles vis-à-vis de nanoparticules de chlorure de sodium et d'argent. D'après cette étude, la perméance de ces dernières tendrait à devenir constante en-dessous de 2 nm, alors qu'elle diminuait continûment avec le diamètre de particules. En 1997 cependant, Alonso et al. montreront que toutes ces observations peuvent en fait être expliquées par des problèmes métrologiques, notamment de sélection de taille de particules par les DMA (voir chapitre II). Les mesures d'efficacité réalisées via deux DMA en série, afin d'être plus précis en termes de diamètre de particules sélectionné, ne laissent plus apparaître la moindre dégradation de E, pas même pour des ions de 1,36 nm.

Le débat aurait pu rester clos, mais fut ré-ouvert sept ans plus tard, en 2004, lorsque Balazy et al. (2004) ont affirmé avoir mesuré une chute spectaculaire de l'efficacité de filtres à fibres en-dessous de 20 nm, autrement dit bien au-dessus des 10 nm proposés par Wang et Kasper. VanGulijk et Bal (2004) auraient quant à eux observé des différences de comportement de leur média (caractéristiques non spécifiées) en fonction de la nature des particules (NaCl et H_2O), entre 7 et 25 nm …

Tel était l'état de l'art concernant la filtration des nanoparticules en octobre 2005, lors du début de la présente thèse. Compte tenu des divergences entre les différentes études menées, plusieurs questions restaient en suspens : le phénomène de rebond thermique existe-t-il ? Si oui, à partir de quel diamètre de particules se manifeste-t-il ? Y'a-t-il une influence notable du couple de matériaux fibre-particules ?

Depuis, d'autres travaux ont été publiés, sans pour autant répondre pleinement à ces interrogations : en premier lieu, l'étude de Heim et al. (2005) a montré que l'utilisation de deux détecteurs de particules différents, pour le comptage de la concentration en amont et en aval du filtre, pouvait entraîner des erreurs d'interprétation, allant jusqu'à une fausse remontée de la perméance des particules. Avec un seul CNC (voir chapitre II) et pour leurs différents médias, Heim et al. (2005) n'observent aucune déviation significative de leurs points au modèle de Kirsch et Fuchs (1968), sur l'ensemble de la plage 2,5-20 nm.
En revanche, en-dessous de 2 nm, Kim C.S. et al. (2006) auraient mesuré une chute brutale de l'efficacité de leurs deux filtres à fibres. Toutefois, pour pouvoir sélectionner des particules aussi petites que 1 nm, ces auteurs ont dû utiliser leur nano-DMA dans des conditions extrêmes. Techniquement parlant, le débit de sheath air (voir chapitre II) a été poussé à 20 $L.min^{-1}$, là où l'instrument est initialement conçu pour travailler à 15 $L.min^{-1}$ au maximum. Ceci peut avoir entraîné des répercussions sur la résolution de l'appareil. Remarquons que ces travaux restent les seuls à ce jour à n'avoir été ni confirmés ni infirmés par une autre étude.

Kim S.C. et al. (2007) et Huang et al. (2007) ont respectivement utilisé comme aérosol test pour leurs filtres à fibres des particules d'argent et de NaCl. Leurs limites basses se situaient à 3 et 4,5 nm. Conformément aux théories classiques, l'efficacité de leurs médias augmente lorsque le diamètre de particules diminue. Comme énoncé plus haut, Wang et al. (2007) utiliseront les résultats de Kim S.C. et al. (2007) pour développer le dernier modèle répertorié dans le tableau I-2. En vu d'observer plus facilement un éventuel rebond de particules entre 3 et 20 nm, Shin et al. (2008) ont récemment travaillé jusqu'à 500 K (cf. plus haut l'influence de T sur R et ε), mais n'ont observé aucune baisse d'efficacité de leur grille ; nous reviendrons sur cette tentative au chapitre III.

Bien que leur but n'était pas l'observation de rebond thermique, citons aussi l'étude de 2007 de Steffens et Coury, portant sur la collecte de particules jusque 8,5 nm de diamètre par un filtre en polyester. Ces deux auteurs ont montré que le modèle de Liu et Rubow (1990) pouvait être amélioré en prenant également en compte un phénomène d'interception pour les particules les plus fines, via un diamètre « effectif » de collecte calculé à partir de d_p et de la distance parcourue en un temps t par mouvement brownien [Steffens et Coury (2007)].

Enfin, au-delà de ces études, notons que Podgorski, co-auteur des travaux de Balazy et al. (2004), aurait rapporté lors d'une correspondance électronique avec Japuntich, retranscrite au début de l'année 2006 dans une note technique de la société 3M®, que : « malheureusement, ces résultats étaient erronés en raison d'un défaut du spectromètre utilisé (un WPS). L'instrument ayant été remis à niveau par son fabricant et les expériences réitérées, la diminution d'efficacité de filtration n'est plus observée » (traduction de l'anglais).

Les tableaux I-5 et I-6, pages suivantes, reprennent et synthétisent l'ensemble des travaux énumérés ci-avant.

Tableau I-5 : Principales études expérimentales de filtration des nanoparticules menées jusqu'en 2004

Année	Auteurs	Couple de matériaux particule/fibre	Conditions d'essais	Résultats
1984	Scheibel et Porstendörfer	argent grille d'acier	3,5 nm < d_p < 130 nm d_f = 50 µm, α = 0,2798 U = 2,4 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue
1990	VanOsdell et al.	argent filtres en fibres de verre	4 nm < d_p < 10 nm d_f < 1 µm, α ≈ 0,07-0,08 5 cm.s^{-1} < U < 20 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue
1995	Otani et al.	argent grilles et tubes en acier	1 nm < d_p < 10 nm d_f = 300 µm, α = 0,293 et d_f = 52 µm, α = 0,31 1,2 cm.s^{-1} < U < 3,6 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue mais la pénétration des tubes augmente en-dessous de 2 nm
1996	Skaptsov et al.	WO_3 et MoO_3 grille d'acier	3,1 nm < d_p < 15,4 nm T = 295, 316 et 337 K U = 2,92 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue mais $P_{exp} = 2 \times Pt_{héo}$ et P = f(T)
1996	Ichitsubo et al.	argent, NaCl et benzène grille d'acier	1 nm < d_p < 7 nm d_f = 75 µm, α = 0,289	E augmente lorsque d_p diminue puis stagne en-dessous de 2 nm
1997	Alonso et al.	argent et NaCl grille et tubes en acier	1 nm < d_p < 7 nm d_f = 75 µm, α = 0,289 6 cm.s^{-1} < U < 100 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue
2004	Balazy et al.	aérosol liquide de DEHS filtres à fibres	10 nm < d_p < 0,5 µm U = 7,5 ou 7,9 cm.s^{-1}	E diminue en-dessous de 20 nm *démenti en 2006 par Podgorski*
2004	VanGulijk et Bal	NaCl et H_2O filtre en fibres de verre	7 nm < d_p < 25 nm	E varie avec la nature de l'aérosol

Tableau I-6 : Etudes expérimentales de filtration des nanoparticules publiées depuis 2005

Année	Auteurs	Couple de matériaux particule/fibre	Conditions d'essais	Résultats
2005	Heim et al.	NaCl filtre en fils d'acier grilles en nickel et polyéthylène téréphtalate (et non polypropylène)	2,5 nm < d_p < 20 nm 4,2 µm < d_f < 110 µm 0,0022 < α < 0,387 1,44 cm.s^{-1} < U < 6,48 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue
2006	Kim C.S. et al.	NaCl filtres en fibres de verre	1 nm < d_p < 100 nm d_f = 9,1 et 11,8 µm α = 0,06 U = 2,5 cm.s^{-1}	E diminue en-dessous de 1,3 nm
2007	Kim S.C. et al.	argent filtres en fibres de verre	3 nm < d_p < 20 nm 1,9 µm< d_f < 4,9 µm 0,039 < α < 0,05 U = 5,3 - 10 et 15 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue
2007	Huang et al.	NaCl filtres à fibres pour masques respiratoires	4,5 nm < d_p filtre B: d_f = 13 µm, α = 0,035 2,8 cm.s^{-1} < U < 8,6 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue
2007	Steffens et Coury	NaCl filtre en polyester	8,5 nm < d_p < 94,8 nm d_f = 16 µm, α = 0,118 3 cm.s^{-1} < U < 25 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue
2008	Shin et al.	argent grille d'acier	3 nm < d_p < 20 nm d_f = 90 µm, α = 0,3105 296 < T < 500 K 4,17 < U < 7,04 cm.s^{-1}	E augmente lorsque d_p diminue et lorsque T augmente

Plusieurs conclusions s'imposent face à cette revue bibliographique. Tout d'abord, et en contradiction avec les démonstrations de Wang et Kasper (1991), l'efficacité de filtration des médias, grille ou filtre, ne semble pas être « entachée » par le moindre phénomène de rebond des particules sur la plage 2-10 nm (le banc d'essai développé au LSGC, présenté au chapitre II, nous permettra de descendre jusque 4 nm). En-dessous de 2 nm, le doute reste permis….
La question de l'influence du couple de matériaux fibre/particule demeure quant à elle posée, c'est pourquoi différents types de filtres (fibres de verre, polyester, métalliques) et différentes natures de particules (cuivre et carbone) seront testés au cours de cette étude.

4. Efficacité unitaire de collecte par effets électrostatiques

Si les fibres ou les particules, voire les deux, sont porteuses de charges, des forces électrostatiques peuvent influer sur l'efficacité de filtration. Ces forces sont nommées :

- forces image si la particule est chargée et la fibre neutre
- forces de polarisation si la fibre est chargée et la particule neutre
- forces coulombienne si fibres et particules sont chargées

De telles forces sont notamment mises à profit dans le cas des filtres électrets dont les fibres, généralement en polymère, possèdent une distribution de charges électrostatiques permettant d'améliorer sensiblement l'efficacité du média (du moins tant que les fibres sont chargées) sans en augmenter la perte de charge ΔP_f, autrement dit la « consommation énergétique » [Emi et al. (1987), Brown (1993), Lee et al. (2002), Wei et al. (2006)].

A l'image des autres mécanismes de collecte, une efficacité unitaire de fibre $\eta_{élec}$, dépendant de nombres adimensionnels, peut être définie pour chacune des trois forces (tableau I-7).

Tableau I-7 : Expressions de l'efficacité unitaire de collecte par effets électrostatiques $\eta_{élec}$

Auteurs	$\eta_{élec}$	nombre adimensionnel
particules chargées / fibres neutres (forces image)		
Lundgren et Whitby (1965)	$\eta_{0q} = 1{,}5\ N_{0q}^{1/2}$	$N_{0q} = \left(\frac{\varepsilon_f - 1}{\varepsilon_f + 1}\right)\frac{q^2\,Cu}{12\,\pi^2\mu_g\,U\,\varepsilon_0\,d_p\,d_f^2}$
Yoshioka et al. (1968)	$\eta_{0q} = 2{,}3\ N_{0q}^{1/2}$	
particules neutres / fibres chargées (forces de polarisation)		
Stenhouse (1974)	$\eta_{q0} = 0{,}84\ N_{q0}^{0,75}$	$N_{q0} = \left(\frac{\varepsilon_p - 1}{\varepsilon_p + 2}\right)\frac{\lambda^2\,d_p^2\,Cu}{3\,\pi^2\mu_g\,U\,\varepsilon_0\,d_f^3}$
Kraemer et Johnstone (1955)	$\eta_{q0} = \left(\frac{3\pi}{2}\right)^{1/3} N_{q0}^{0,75}$	
particules chargées / fibres chargées (forces coulombiennes)		
Kraemer et Johnstone (1955)	$\eta_{qq} = \pi\,N_{qq}$	$N_{qq} = \frac{\lambda\,q\,Cu}{3\,\pi^2\mu_g\,U\,\varepsilon_0\,d_p\,d_f}$

La difficulté majeure dans l'utilisation des expressions de Stenhouse (1974) et Kraemer et Johnstone (1955) réside dans la détermination de la charge linéique des fibres λ (en $C.m^{-1}$).

ε_f et ε_p sont respectivement les constantes diélectriques de la fibre et de la particule, ε_0 est la permittivité du vide ($8{,}84 \times 10^{-12}$ F.m^{-1}) et q est la charge portée par la particule :

$$q = N \times e \tag{I-38}$$

avec N, le nombre relatif de charges élémentaires e ($1{,}6 \times 10^{-19}$ C) portées par la particule.

Dans le domaine ultrafin, diffusion brownienne et forces électrostatiques sont susceptibles d'agir simultanément dans la collecte des particules. Or, rares sont les études à avoir été menées en-dessous de 100 nm. A notre connaissance, seuls Alonso et al. (2007) ont établi une expression tenant compte à la fois de la diffusion brownienne et de la force image, supposées indépendantes l'une de l'autre, à partir de mesures d'efficacité de grilles vis-à-vis de particules entre 25 et 65 nm, porteuses de 1 à 3 charges élémentaires. Ils aboutissent à l'expression suivante :

$$\eta = \eta_d + \eta_{0q} \tag{I-39}$$

$$\eta = 2{,}7\ Pe^{-2/3} + 29{,}7\ N_{0q}^{\ 0{,}59} \tag{I-40}$$

Afin de conserver un exposant 1/2 sur N_{0q}, Alonso et al. (2007) proposent également :

$$\eta = 2{,}7\ Pe^{-2/3} + 9{,}7\ N_{0q}^{\ 1/2} \tag{I-41}$$

Ces auteurs ne précisent cependant pas les valeurs de ε_f (leurs médias sont des grilles d'acier ou d'aluminium) prises pour calculer N_{0q}.

Quelques années plus tôt, Alonso et Alguacil (1999) s'étaient également intéressés à l'évolution au cours du temps de l'efficacité de médias diélectriques (grille en PET) avec l'accumulation de charges due à la collecte de particules monochargées entre 2 et 10 nm (nombre de Péclet compris entre 4 et 80). Ils ont notamment expliqué leurs résultats par un écoulement des charges à la terre particulièrement lent, entraînant l'apparition de forces coulombiennes qui augmentent l'efficacité de collecte de l'ensemble grille + porte-filtre. D'après les deux auteurs, l'aérosol approchant du filtre serait en fait répulsé par les charges de même signe déposées par les particules précédemment collectées. L'expression suivante est alors proposée pour la perméance P* de l'ensemble grille + porte-filtre :

$$P^* = \exp\left[-4\frac{\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi\, d_f}\left(2{,}7\, Pe^{-2/3} + 3{,}73\, Pe^{-0{,}49}\, N_{qq}^{0{,}69}\right)\right] \tag{I-42}$$

Cependant, si l'hypothèse de répulsion des particules vers la paroi du porte-filtre s'avérait juste, il nous semble que l'applicabilité de (I-42) risquerait d'être limitée aux systèmes de dimensions proches de l'installation d'Alonso et Alguacil. En effet, les effets répulsifs, mais surtout de bord, ne seront certainement pas les mêmes avec un filtre test de 3 cm de diamètre et un filtre industriel de plusieurs mètres carrés.

La filtration des nanoparticules chargées reste donc un domaine jusqu'à présent peu étudié, qui demande à être davantage exploré.

Chapitre II
-
Matériel et Méthodes

1. Présentation du banc d'essai

En l'absence de législation claire quant à la manipulation des nanoparticules, le principe de précaution prévaut. Celui-ci a donc été pris en compte dès la phase de conception de notre banc d'essai (figures II-1 et II-2), aboutissant à l'adoption de différents systèmes de sécurité : partie « double-conduite » (partie test du banc) isolée dans une boîte à gants (schématisée en pointillés sur la figure II-1), ensemble de l'installation placé sous armoire ventilée, filtres THE au niveau de chaque sortie aérosol, soit, au total, jusqu'à 3 niveaux de confinement en fonctionnement normal (sans compter les équipements de protection individuelle : masque FFP3, lunettes, gants). Ces dispositions, qui ont d'ailleurs anticipé les recommandations du CNRS en matière de prévention des risques liés aux nanoparticules (note du 27 février 2007), sont attendues pour fournir un niveau de protection maximal à l'opérateur et à l'environnement extérieur.

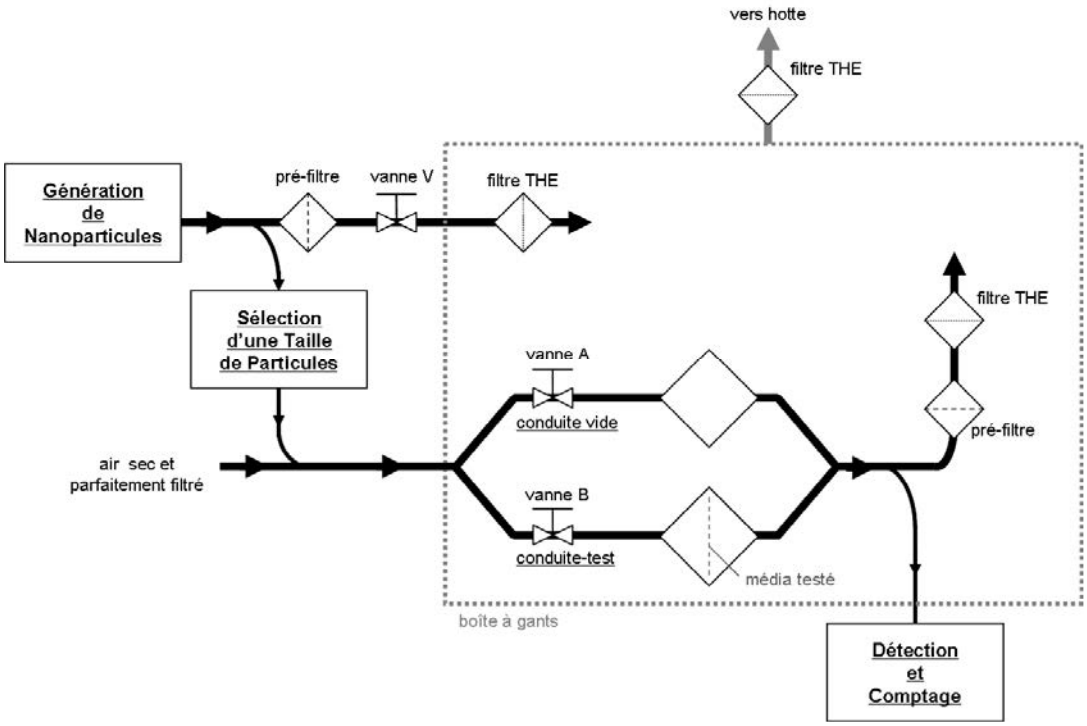


Figure II-1 : Principe du banc d'essai MEFIANCE

1.1. Principe de fonctionnement et protocole opératoire

La première opération de notre banc, baptisé MEFIANCE (pour **M**esure de l'**E**fficacité des **FI**ltres vis-à-vis des **A**érosols **N**anométriques **C**hargés ou **E**lectriquement neutres) consiste à générer un aérosol nanométrique, par nature polydispersé, dont les particules vont ensuite être sélectionnées taille par taille afin de tester l'efficacité des filtres pour différents diamètres de particules (efficacité spectrale). Grâce à une configuration en « double-conduite », la mesure des concentrations particulaires à l'amont et à l'aval du média testé est réalisée à l'aide d'un seul et même détecteur. D'après Heim et al. (2005), cette « dummy-chamber method » est la plus appropriée à l'étude de la filtration des nanoparticules, puisqu'elle évite les artéfacts liés à l'emploi de deux compteurs différents, l'un pour C_{amont}, et l'autre pour C_{aval}.

Une autre solution aurait consisté à installer deux cannes de prélèvement de part et d'autre d'un unique porte-filtre, autrement dit une seule conduite : l'inconvénient d'un tel dispositif est qu'il nécessite, pour obtenir la perméance du filtre seul, et non celle du couple « filtre + porte-filtre », de mesurer les pertes par dépôt lorsque ce dernier est vide. Cette opération n'est a priori pas nécessaire avec la double-conduite.

Figure II-2 : Banc d'essai MEFIANCE installé au LSGC

La perméance des médias testés est donc établie de la manière suivante : pour un diamètre de particules sélectionné (nous verrons en détails comment dans la partie 1.3.), la vanne A est ouverte et la vanne B fermée (figure II-1). La concentration en particules en sortie de la conduite-vide (ou conduite A), correspondant à C_{amont}, est suivie durant 1 minute : ceci permet de s'assurer que la concentration en aérosol sélectionné est bien stable. Les positions respectives des vannes A et B sont ensuite inversées (A est fermée et B ouverte), et la concentration C_{aval} en sortie de la conduite-test (conduite B) est à son tour mesurée pendant 60 secondes. La perméance du média installé dans le porte-filtre de la conduite B est alors égale, pour le diamètre de particules sélectionné, au rapport entre C_{aval} et C_{amont} (équation I-6). Un nouveau diamètre est sélectionné, une nouvelle concentration C_{amont} mesurée, et ainsi de suite…
Dans un souci de répétabilité et de reproductibilité des résultats, chaque mesure de perméance, pour un diamètre de particules et un média donnés, a été réalisée au minimum trois fois. Les valeurs présentées aux chapitres III, IV et V seront donc la moyenne d'au moins trois mesures, obtenues à des jours et pour des concentrations en aérosol différents.

1.2. Génération de nanoparticules

Tandis que la plupart des auteurs listés dans les tableaux I-5 et I-6 obtiennent leur aérosol primaire par atomisation d'une solution ou par évaporation/condensation au sein d'un four [Liu et Pui (1974), Scheibel et Porstendörfer (1983), Bartz et al. (1987), Kodas et Hampden-Smith (1999), Jung et al. (2006)], l'une des originalités de notre travail réside dans l'utilisation d'un générateur de nanoparticules reposant sur le principe d'électro-corrosion.

Initié par les travaux de Helsper et al. (1993), le générateur utilisé est un GFG-1000 commercialisé par la société Palas®. Les particules y sont produites par décharge électrique entre deux électrodes se faisant face au sein d'une chambre en polyamide (figure II-3). Au fur et à mesure de leur consommation, un système automatique maintient l'espace inter-électrodes constant, assurant au GFG-1000 un régime de fonctionnement et une génération stables et reproductibles [Shi et al. (2001)].

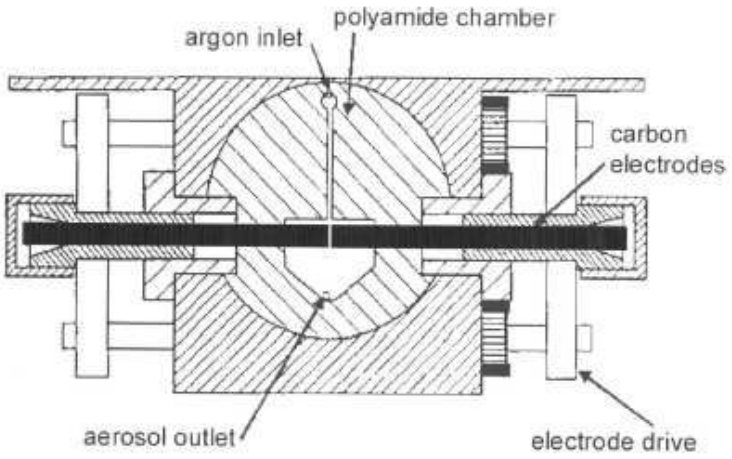


Figure II-3 : Schéma de la chambre de génération du GFG-1000 (documentation Palas®)

Afin d'éviter une possible oxydation des électrodes, notamment celles en graphite, la production des particules a lieu sous atmosphère inerte. Palas® recommande l'utilisation d'argon, le diazote pouvant amener à haute température la formation de composés –CN avec le carbone des électrodes. Formées dans les étincelles, les particules sont évacuées par le flux d'argon et vont former des agglomérats plus ou moins gros en fonction de leur concentration. Cette agglomération peut être en partie réduite et contrôlée par dilution de l'aérosol obtenu dans un courant d'air comprimé haute pureté. Le régime de fonctionnement du générateur dépend donc de trois paramètres : les débits d'alimentation en air et en argon, réglables à partir de deux manodétendeurs situés en façade de l'appareil (variables P_{air} et P_{Ar}), et la fréquence d'étincelle F, en hertz, contrôlée par un potentiostat dont la position f varie de 0 à 1000. La correspondance entre f et F est la suivante :

$$F = \frac{3}{10} f \qquad \text{(II-1)}$$

Le diamètre moyen et la concentration en particules de l'aérosol produit peuvent être ajustés, dans une certaine mesure, en jouant sur ces trois paramètres. L'influence de chacun d'eux est indiqué dans le tableau II-1 (voir aussi annexe A). A noter qu'un débit minimal d'argon de 3 $L.min^{-1}$ environ ($P_{Ar} \approx 0{,}8$ bar) est nécessaire, quelles que soient les valeurs choisies pour P_{air} et f, afin de pouvoir déclencher la production des décharges électriques (sécurité du générateur).

Tableau II-1 : Influence de P_{Ar}, P_{air} et f sur les caractéristiques de l'aérosol produit par le GFG-1000

	augmentation de		
	P_{Ar}	**P_{air}**	**f**
Diamètre moyen	↘	↘	↗
Flux de particules	↗	↘	↗

Une 4ème « variable » du système est la nature chimique des électrodes. Evans et al. (2003) et Roth et al. (2004) ont montré que des aérosols plus fins pouvaient être obtenus en utilisant des électrodes métalliques plutôt que les électrodes de graphite commercialisées avec l'appareil. Les particules générées sont alors de forme plus sphérique que celles en carbone, ces dernières étant davantage des agglomérats (pouvant atteindre plusieurs centaines de nanomètres) que de « véritables » nanoparticules ; on parlera alors de particules nanostructurées, caractérisées par une certaine dimension fractale [Evans et al. (2003)].

Afin de pouvoir les commenter dans le détail, les distributions granulométriques types générées à l'aide du Palas® GFG-1000 pour nos études de filtration seront présentées un peu plus loin dans ce rapport (partie 3), après description des instruments de mesure permettant leur détermination (CNC et DMA).

1.3. Sélection d'une taille de particules

L'une des phases-clés du banc d'essai est la sélection taille par taille des particules, suite à leur génération. Cette opération est réalisée grâce à un analyseur différentiel de mobilité électrique (ADME) ou Differential Mobility Analyzer en anglais (DMA). Cet appareil permet, à partir d'un aérosol polydispersé, de ne sélectionner qu'un seul diamètre de particules, formant ainsi un aérosol monodispersé. On parle également d'aérosol monomobile, la séparation des particules s'effectuant selon leur mobilité électrique. Deux étapes sont généralement nécessaires : la première consiste à charger électriquement les particules (marquage), pour pouvoir ensuite les séparer grâce à leur différence de trajectoire au sein d'un champ électrique.

1.3.1. Marquage des particules

Lorsqu'un aérosol se trouve en présence d'une source constante d'ions bipolaires, comme une source radioactive ^{85}Kr par exemple, sa charge électrique atteint un état stationnaire, dit « équilibre de Boltzmann ». Cet équilibre peut être représenté par la relation empirique de Wiedensohler (1988). Selon ce modèle, la répartition de charges sur des particules de diamètre d_p (en nm) suit une distribution g(N) telle que :

$$g(N) = 10^{b(N)} \qquad \text{(II-2)}$$

avec

$$b(N) = \sum_{i=0}^{5} \left[a_i(N) \left(\log d_p \right)^i \right] \qquad \text{(II-3)}$$

Pour un nombre de charges N compris entre –2 et 2, les coefficients $a_i(N)$ de l'équation (II-3) sont donnés dans le tableau II-2 :

Tableau II-2 : Coefficients $a_i(N)$ de l'équation (II-2)

$a_i(N)$	N = –2	N = –1	N = 0	N = 1	N = 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

En-dessous de 20 nm, la probabilité d'existence de particules doublement chargées, positives ou négatives, peut être considérée comme nulle. Inversement, au-dessus de 100 nm, des particules pour lesquelles $|N| > 2$ peuvent commencer à apparaître.
Pour $d_p < 100$ nm, la loi de charge g(N) est représentée figure II-4 :

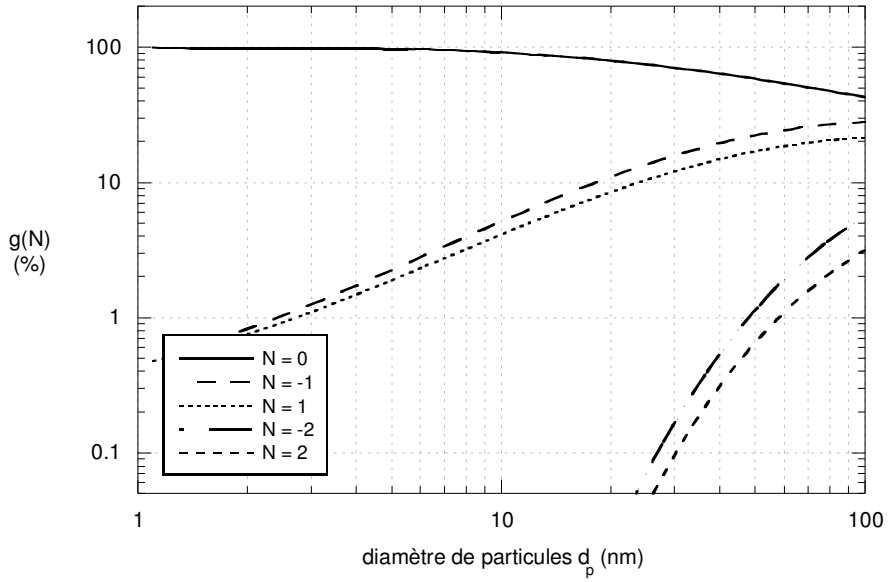


Figure II-4 : Distribution de charge de particules entre 1 et 100 nm après passage au sein d'une source bipolaire

Au vu de la figure II-4, il apparaît que plus l'aérosol est gros, plus la quantité de particules chargées en sortie de source ^{85}Kr augmente, tout signe et nombre de charges confondus. Cette augmentation se fait au détriment des particules non chargées (N = 0), dont la fraction diminue lorsque d_p augmente. La répartition entre signe (+) et signe (–) étant quasiment identique, l'aérosol en sortie de source est globalement neutre (d'où le terme de « neutraliseur » parfois employé pour désigner la source ^{85}Kr) ; certaines particules portent

néanmoins une, voire deux charges. Au sein d'un champ électrique, ces dernières auront un comportement différent des particules non chargées, et vont donc pouvoir être séparées du reste de l'aérosol. C'est la raison pour laquelle on parle de marquage des particules, par diffusion d'ions.

Note : On remarquera sur la figure II-4 que quel que soit le diamètre d_p, la proportion de particules chargées négativement est légèrement supérieure à celle des particules chargées positivement. L'équilibre de Boltzmann est donc en réalité déplacé vers les charges négatives. Nous avons pu vérifier ce dernier point en redirigeant l'aérosol en sortie de source ^{85}Kr vers un électromètre (annexe B) : l'intensité du faible courant généré est effectivement négative.

1.3.2. Sélection par mobilité électrique

Une partie des particules étant chargée, celles-ci vont pouvoir être séparées diamètre par diamètre en les soumettant à un champ électrique. En effet, l'acquisition d'une ou plusieurs charges électriques par une particule lui confère une mobilité électrique, notée Z_p. Cette propriété, reliée au nombre de charges portées et fonction du diamètre d_p, traduit la capacité d'une particule à se déplacer sous l'effet d'une force électrique :

$$Z_p = \frac{|N|\, e\, Cu}{3\,\pi\,\mu_g\, d_p} \qquad \text{(II-4)}$$

Si le champ électrique auquel est soumis une particule chargée est suffisamment intense pour considérer les forces de gravité, d'inertie et de diffusion brownienne comme négligeables, la trajectoire de la dite particule peut être obtenue à partir de la vitesse du fluide porteur $\overrightarrow{U_{DMA}}$ et de la vitesse de dérive due au champ électrique $Z_p\vec{E}$:

$$\overrightarrow{V_p} = \overrightarrow{U_{DMA}} + Z_p\vec{E} \qquad \text{(II-5)}$$

avec $\overrightarrow{V_p}$, le vecteur vitesse de la particule. Il est donc possible de contrôler le diamètre de particules sélectionné, intervenant au travers de Z_p, en maîtrisant $\overrightarrow{U_{DMA}}$ et $\vec{E}$.

Schématiquement, un DMA peut être vu comme deux cylindres conducteurs concentriques (figure II-5). Un champ électrique est généré entre ces deux cylindres, appelés aussi électrodes (à ne pas confondre avec les électrodes du générateur), et va conditionner la composante radiale ($\overrightarrow{V_r}$) de la trajectoire des particules. La composante axiale ($\overrightarrow{V_a}$) est quant à elle déterminée par le débit q_a d'aérosol prélevé, plus un débit d'accompagnement ajustable q_{sh}, dit « sheath air flowrate » en anglais, recommandé égal à $10 \times q_a$ au minimum. Au final, seules les particules dont la mobilité électrique coïncident avec les lignes de courant alimentant l'orifice d'extraction du DMA, situé en partie basse d'appareil, seront sélectionnées. Les autres particules de même signe seront collectées le long de l'électrode centrale, tandis que les particules de signe opposé se déposent sur l'électrode externe.

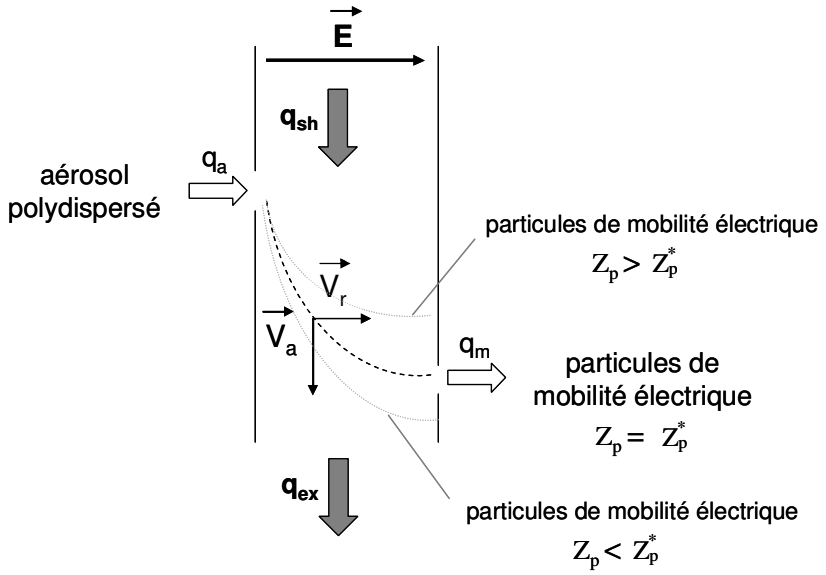


Figure II-5 : Sélection par un DMA d'une particule de mobilité électrique donnée

Remarquons que d'après l'expression (II-4) une petite particule monochargée peut avoir la même mobilité qu'une plus grosse particule, mais multichargée. Dès lors, en théorie, cette plus grosse particule est susceptible de sortir du DMA à la même tension que les petites, et va donc « polluer » l'aérosol fin sélectionné. Ce cas de figure reste néanmoins assez peu probable sur notre domaine d'étude. En effet, supposons que l'objectif soit d'obtenir en sortie de DMA un aérosol de 20 nm de diamètre. Des particules bichargées de 30 nm vont avoir la même mobilité que les particules de 20 nm monochargées visées (figure II-6). Toutefois, en sortie de source ^{85}Kr (figure II-4), ces grosses particules ne représentent que 0,1 à 0,2 % de l'ensemble des particules de 30 nm envoyé dans le DMA. Leur quantité, si tant est qu'elles sortent effectivement de l'appareil (les dépôts peuvent être importants, voir partie 2), est donc parfaitement négligeable. Nous nous sommes assurés de ce dernier point suite au prêt d'un second nano-DMA par TSI®: placé en série avec notre propre instrument, la taille de particules mesurée coïncide bien au diamètre sélectionné par le premier DMA, et aucun pic correspondant à des particules plus grosses multichargées n'apparaît (annexe C).
Ainsi, au-delà de son rôle de chargeur/marqueur de particules, la source ^{85}Kr fait aussi office, en partie, « d'écran » aux grosses particules. Pour les particules de très gros diamètres (plusieurs centaines de nm), ce rôle est assuré, lorsqu'elles existent, par un impacteur situé en amont de la source (figure II-7). Celui-ci sert également de contrôleur pour le débit d'échantillonnage q_a. Pour des questions pratiques, ce débit q_a est généralement égal à q_m (figure II-5) ; dès lors, $q_{sh} = q_{ex}$. A noter enfin que le DMA étant dépourvu de pompe de prélèvement, l'envoi de q_a dans l'appareil n'est rendu possible que grâce à la vanne manuelle V installée sur la conduite de génération (figure II-1). En jouant sur le degré d'ouverture de cette vanne, la surpression nécessaire à l'injection d'un débit q_a donné dans le DMA peut être réglée avec précision.

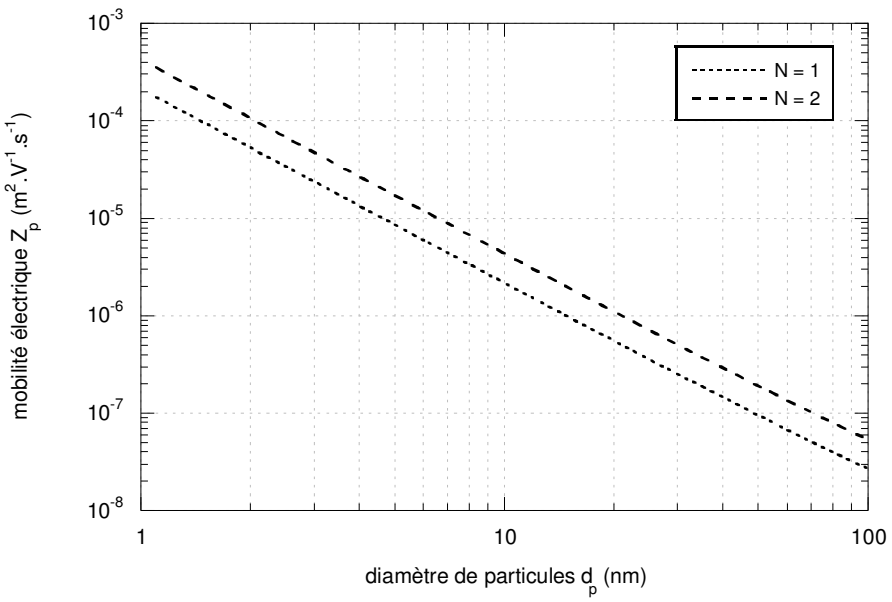


Figure II-6 : Mobilité électrique en fonction du diamètre de la particule et du nombre de charges portées

Fonction de la tension W appliquée entre les deux électrodes et du débit d'accompagnement q_{sh}, la mobilité Z_p^* sélectionnée dépend également des propriétés géométriques de l'appareil, comme sa longueur L_{DMA} ou l'espacement entre les deux cylindres.
Deux des DMA commercialisés par la société TSI® sont disponibles au LSGC : le nano- et le long-DMA. Ces appareils varient en termes de géométrie, et donc en termes de plage d'utilisation (annexe D). Développé spécifiquement pour la sélection de particules ultrafines [Chen et al. (1998)], seul le nano-DMA a été utilisé pour cette étude. Son principe de fonctionnement est schématisé figure II-7 (le DMA y est montré raccordé à la plateforme de commande 3080 et à la source ^{85}Kr). Pour cet appareil :

$$Z_p^* = \frac{q_{sh}}{2\pi L_{DMA} W} \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right) \qquad \text{(II-6)}$$

soit

$$\frac{d_p^*}{Cu^*} = \frac{2|N| e W L_{DMA}}{3\mu_g q_{sh} \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \qquad \text{(II-7)}$$

avec r_1 et r_2, les rayons internes et externes de l'espace inter-électrodes (respectivement égaux à 0,937 et 1,961 cm). L_{DMA} est égale à 5 cm. Pour un débit de sheath air q_{sh} fixé à 15 $L.min^{-1}$ (le débit maximum q_a pouvant être envoyé entre les deux électrodes est de 1,5 $L.min^{-1}$ et, comme énoncé précédemment, $q_{sh} = 10 \times q_a$), la différence de potentiel W à appliquer pour sélectionner des particules monochargées de diamètre d_p^* est représentée figure II-8.

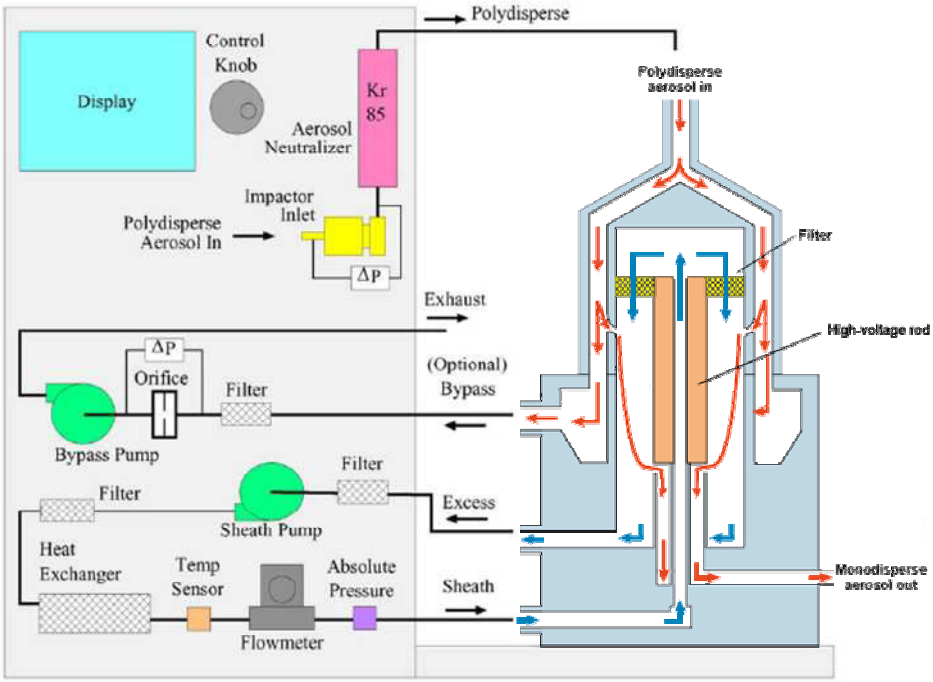


Figure II-7 : Schéma de fonctionnement du nano-DMA (réalisé à partir de la documentation constructeur)

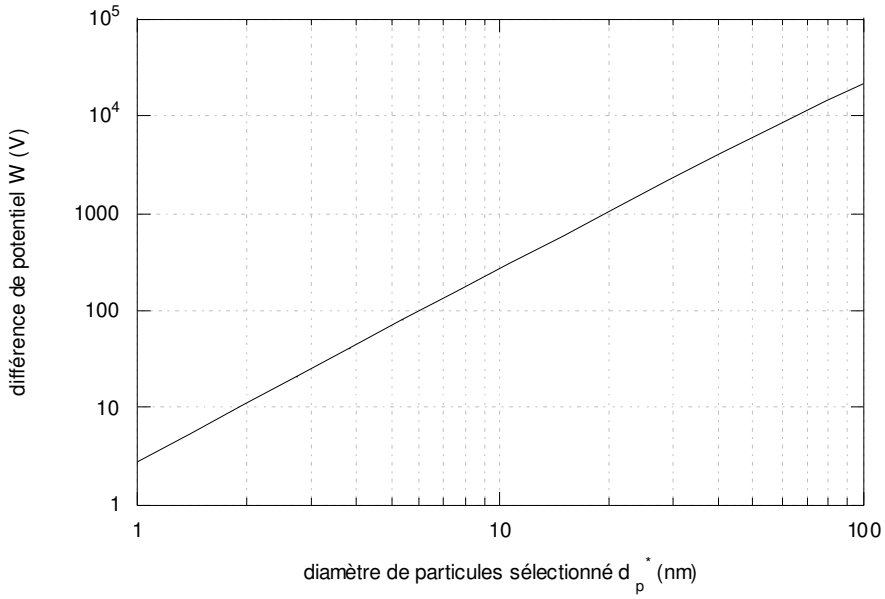


Figure II-8 : Tension à appliquer au nano-DMA en fonction du diamètre de particules souhaité ($N = 1$ et $q_{sh} = 15$ L.min^{-1})

Un aérosol monomobile, chargé positivement ou négativement selon la polarité des électrodes, est donc obtenu en sortie du nano-DMA. Les auteurs cités au chapitre I (tableaux I-5 et I-6) re-neutralisent généralement leurs particules grâce à une seconde source radioactive, de manière à travailler avec des aérosols globalement neutres électriquement, piégés uniquement, selon eux, par diffusion brownienne (effets électrostatiques considérés nuls). Ne disposant que d'une seule et unique source ^{85}Kr, une telle opération semble impossible, ce qui nous limite donc a priori à l'étude de la filtration d'aérosols nanométriques chargés. Ce problème a néanmoins pu être contourné grâce aux propriétés des aérosols

générés par le GFG-1000. En effet, comme nous le verrons dans la partie 3, les nanoparticules produites par le générateur Palas® sont pour partie porteuses de charges. Ainsi, il nous a été possible de sélectionner un diamètre de particules sans marquage préalable de ces dernières (puisque déjà chargées), et réserver ainsi notre source ^{85}Kr à leur neutralisation en sortie de DMA, de manière à travailler nous aussi avec des aérosols monodispersés à l'équilibre de Boltzmann. Un ensemble de mesures a été effectué afin de valider cette méthode de génération/sélection (annexe E), l'un des risques majeurs étant la présence de particules multichargées, et donc de mobilité identique à celle de particules plus fines. En effet, la source radioactive ne jouant plus le rôle d'écran, souligné un peu plus haut, en amont de DMA, rien ne garantit à première vue que les fractions d'aérosol chargées en sortie de générateur Palas® sont uniquement composées de particules monochargées. Dans le cas d'un mélange de particules de différents niveaux de charges, sélectionner directement avec le DMA sans neutralisation préalable aboutirait à l'obtention d'un aérosol monomobile, mais pas monodispersé, plusieurs diamètres de particules pouvant avoir la même mobilité selon N (figure II-6).

1.4. Détection et comptage

Deux grands types d'appareils existent pour la détection des nanoparticules :

- les électromètres, qui reposent sur la mesure d'un courant électrique généré par les particules porteuses de charges au sein d'une cage de Faraday (annexe B)
- les compteurs à noyaux de condensation (CNC).

Ces derniers ont l'avantage d'être plus sensibles, et moins restrictifs d'utilisation que les premiers. En effet, un électromètre ne pourra fonctionner qu'à condition que les particules soient chargées, et en concentration suffisante pour générer un courant mesurable (de l'ordre du femtoampère). Les électromètres conservent toutefois certains intérêts, notamment celui d'être non restrictif en termes de taille de particule détectée, pour une efficacité toujours égale à 1, ce qui leur vaut d'être couramment utilisés pour l'étalonnage des CNC.

Le principe de fonctionnement des CNC est le suivant :

1/ production d'une vapeur d'eau ou d'alcool sursaturée,
2/ croissance des particules par condensation de cette vapeur
3/ détection des particules grossies par méthode optique.

L'idée d'un tel dispositif est attribuée à Aitken (1888). Différents types de CNC ont été développés depuis, variant dans la façon d'induire la sursaturation et de détecter les particules. De même, leur limite basse de détection et leur efficacité de comptage n'ont cessé d'être améliorées [McMurry (2000)]. Principalement issu des travaux de Bricard et al. (1976), Sinclair et Hoopes (1975) et Agarwal et Sem (1980), le CNC utilisé dans cette étude est un modèle 3022A de la société TSI® (figure II-9). L'aérosol prélevé y est grossi par effet Kelvin à l'aide de butanol, par passage d'un saturateur à 35°C vers un condenseur à 10°C. Ainsi réalisé, les nanoparticules atteignent un diamètre de l'ordre de 12 µm [Ahn et Liu (1990)], et peuvent être comptées par photodétection.

Deux débits de prélèvement q_{CNC} sont possibles : 0,3 et 1,5 L/min. Cette seconde option sera privilégiée : dans tous les cas, seul 0,3 L/min passe par le détecteur, mais les 1,2 L/min supplémentaires, bypassés en amont, permettent de limiter les pertes de particules par diffusion.

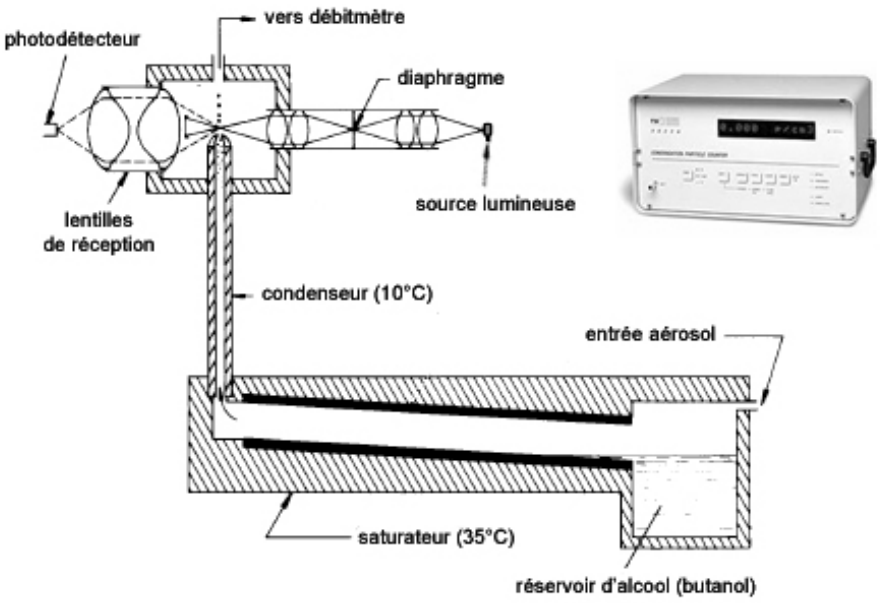


Figure II-9 : CNC 3022A (d'après documentation constructeur)

2. Limites d'utilisation des appareils et artéfacts de mesures potentiels

Le principe de fonctionnement en apparence simple et relativement classique de notre banc d'essai recèle en fait, comme nous allons le voir, de nombreuses sources d'erreurs possibles, essentiellement dues aux instruments de mesure (et à leur caractère parfois trop « pousse-bouton »). Or, comme évoqué au chapitre I, des artéfacts expérimentaux (problème de sélection de taille de particules [Alonso et al. (1997)] ou utilisation de détecteurs amont/aval différents [Heim et al. (2005)] par exemple), peuvent être à l'origine de résultats incertains, voire totalement erronés [les travaux de Balazy et al. (2004) en sont l'un des plus tristes exemples]. C'est la raison pour laquelle une attention toute particulière a été portée à la vérification des performances de nos appareils.

2.1. Efficacité de comptage du CNC

Telle qu'elle est usuellement définie (efficacité de comptage de 50%), la limite basse de détection du CNC 3022A se situe aux alentours de 7 nm. Toutefois, l'appareil possède une efficacité de comptage ε_{CNC} non nulle jusque 3 nm environ : nous avons vérifié ces données en comparant les valeurs de concentrations C_{mes} données par le CNC à celles obtenues à partir d'un électromètre (annexe F). L'accord entre les valeurs de ε_{CNC} trouvées et la courbe fournie par le constructeur est plutôt satisfaisant (figure II-10). Les écarts observés peuvent provenir du fait que les aérosols tests sont différents : particules d'argent pour TSI®, particules de cuivre dans notre cas.

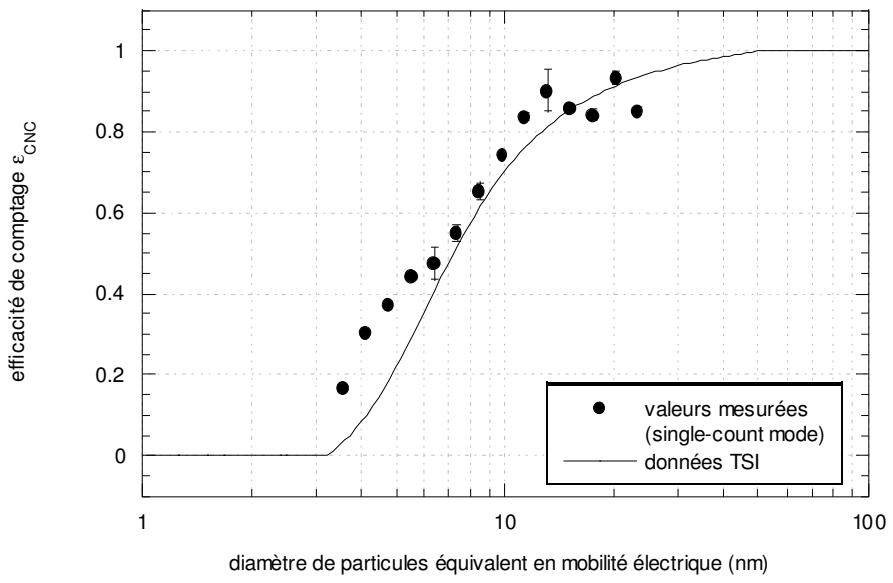


Figure II-10 : Efficacité de comptage du CNC 3022A selon le diamètre de particules, à 1,5 L.min^{-1}

Pouvant paraître de prime abord limitante pour nos mesures, la baisse d'efficacité de comptage du CNC en-dessous de 40 nm pose en réalité peu de problèmes puisque, pour un diamètre de particules donné, la valeur de perméance du filtre testé est obtenue en effectuant le rapport entre deux mesures de concentration. En supposant que l'efficacité de comptage ε_{CNC} reste la même dans les deux cas, celle-ci n'aura finalement pas d'incidence sur la valeur de perméance mesurée. Plus nombreuses et établies de manière statistique à partir de plusieurs appareils, nous utiliserons par la suite les valeurs proposées par TSI®.

2.2. Modes de comptage du CNC

Un point sensible en revanche est le mode de comptage dans lequel va se faire la mesure. En effet, selon leur concentration, le CNC 3022A va déterminer différemment la quantité de particules (figure II-11). En-dessous de 10^4 particules.cm^{-3}, la détection s'opère en mode « dénombrement » (single-count mode), c'est-à-dire que chaque particule est comptée individuellement. Une correction est toutefois apportée au-dessus de 10^3 particules.cm^{-3} pour tenir compte de la coïncidence de plusieurs particules devant le photodétecteur. Au-delà de 10^4 particules.cm^{-3}, l'instrument estime, davantage qu'il ne détecte, la concentration en particules à partir des calibrations dont il a fait l'objet : c'est le mode photométrique.

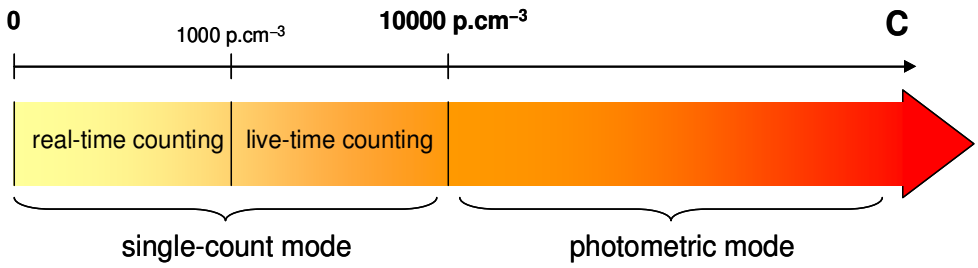


Figure II-11 : Modes de comptage du CNC 3022

Des problèmes peuvent survenir lorsque les concentrations C_{aval} et C_{amont} ne sont pas déterminées dans le même mode de comptage : la figure II-12 montre le résultat expérimental d'une telle situation, observée à plusieurs reprises et pour différents types de médias.

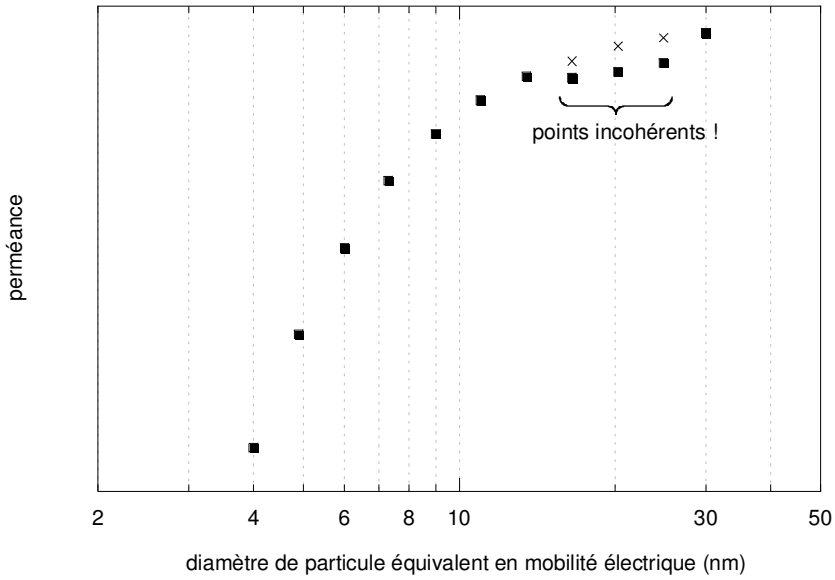


Figure II-12 : Influence du mode de comptage du CNC sur la valeur de perméance mesurée

Les valeurs de perméances mesurées entre 15 et 25 nm sont clairement décalées et ne suivent pas la tendance pourtant bien marquée par les autres points. Ceci est dû au fait que les C_{amont} ont été évaluées en mode photométrique alors que les C_{aval} étaient inférieures à 10^4 particules.cm^{-3} (le filtre ayant collecté une partie des particules) et donc obtenues en mode « dénombrement ». Remesurées dans des modes de comptage identiques, par dilution de l'aérosol, les trois points retrouvent des valeurs cohérentes (représentés par des croix sur la figure II-12). Afin d'éviter ces cas de figure, l'ensemble des points qui seront présentés aux chapitres III, IV et V a été établi pour des concentrations en aérosol inférieures à 10^4 particules.cm^{-3}, autrement dit en single-count mode.

2.3. Fonction de transfert du DMA

Aussi performant soit-il, un DMA ne sélectionnera pas la seule mobilité électrique Z_p^*, mais un domaine étroit de mobilité ΔZ_p centré sur Z_p^*. Cette bande-passante correspond à la plage de mobilité de l'ensemble des particules capables, pour une tension et un débit q_{sh} donnés, de sortir du DMA par l'orifice d'extraction.

Knutson et Whitby (1975) ont développé une approche théorique pour décrire la probabilité, appelée fonction de transfert Ω, qu'a une particule de mobilité Z_p d'être échantillonnée par le débit q_m (figure II-5). D'après ces auteurs, et dans le cas d'un appareil à géométrie cylindrique et écoulement axial comme le nano-DMA, la fonction de transfert a une forme triangulaire et la bande-passante ΔZ_p peut s'écrire :

$$\Delta Z_p = \frac{q_a}{q_{sh}} Z_p^* \qquad \text{(II-8)}$$

d'où la recommandation d'un débit de sheath air égal à au moins 10 fois le débit d'aérosol échantillonné q_a, afin d'avoir une incertitude sur la mobilité sélectionnée inférieure à 10 %.

Déterminée de façon théorique par Knutson et Whitby (1975), la fonction de transfert peut également l'être expérimentalement, via l'utilisation d'un second DMA (le protocole à suivre pour cela est décrit en annexe G). Les fonctions de transfert obtenues pour notre nano-DMA pour différents diamètres d'aérosols sélectionnés sont représentées figure II-13.

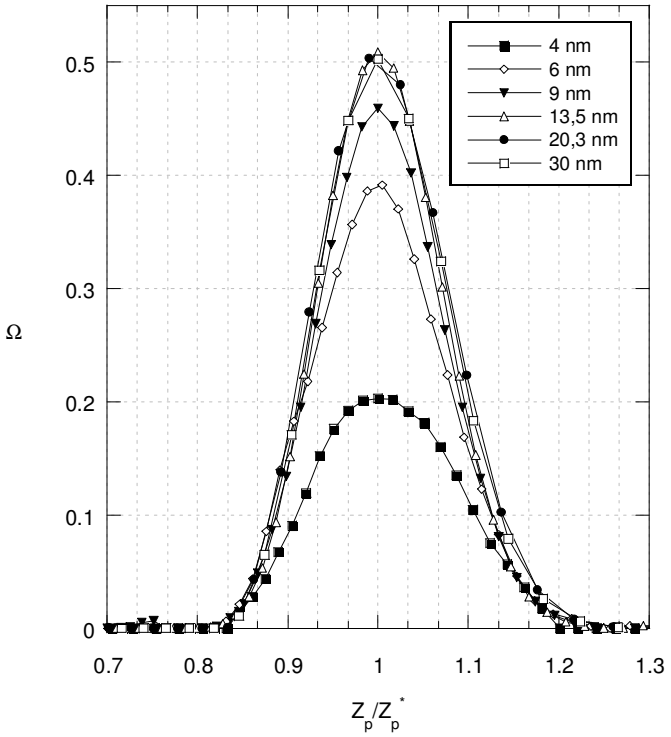


Figure II-13 : Fonction de transfert du nano-DMA pour différents diamètres de particule ($q_a = q_m = 1{,}5$ L.min^{-1} et $q_{sh} = q_{ex} = 15$ L.min^{-1})

Il apparaît que Ω peut effectivement être approximé par un triangle, dont la hauteur h permet d'estimer les pertes en particules au sein du DMA, tandis que la demi-base w correspond à l'incertitude sur Z_p^*. Nous comparons nos valeurs pour ces deux paramètres à celles obtenues par les concepteurs du nano-DMA figures II-14 et II-15 ; les mêmes tendances sont observées mais nos valeurs diffèrent singulièrement de celles de Chen et al. (1998) au-dessus de 10 nm, notamment pour h. Comme pour ε_{CNC} (figure II-10), l'aérosol test n'est pas le même dans les deux cas, ce qui peut expliquer ces écarts.

En-dessous de 10 nm, la fonction de transfert s'élargit progressivement tandis que sa hauteur diminue, traduisant respectivement une baisse de la résolution et une augmentation du dépôt des particules au fur et à mesure que d_p diminue. Ainsi, bien qu'il ait été conçu spécifiquement pour les nanoaérosols, seuls 28 % des particules monochargées de 4 nm entrant dans le DMA en ressortent, contre plus de la moitié au-dessus de 15 nm. Ces effets,

modélisés par Stolzenburg (1988), sont dus au mouvement brownien, d'autant plus important que les particules sont petites. En apparence limitées, les performances du nano-DMA restent néanmoins excellentes en comparaison d'autres systèmes, comme le long-DMA par exemple [Fissan et al. (1996)]. Par ailleurs, pour les essais de filtration réalisés en l'aval de DMA, cela n'a que peu d'importance, l'essentiel étant de sélectionner un diamètre de mobilité, et donc de générer un aérosol monodispersé, de façon stable ; la valeur absolue de la concentration en particules en sortie d'appareil n'est que secondaire (même si trop de pertes peuvent se révéler limitantes ; voir partie 4). En revanche, pour la caractérisation d'un générateur par exemple, les performances du nano-DMA peuvent être déterminantes sur les résultats obtenus (voir partie 3).

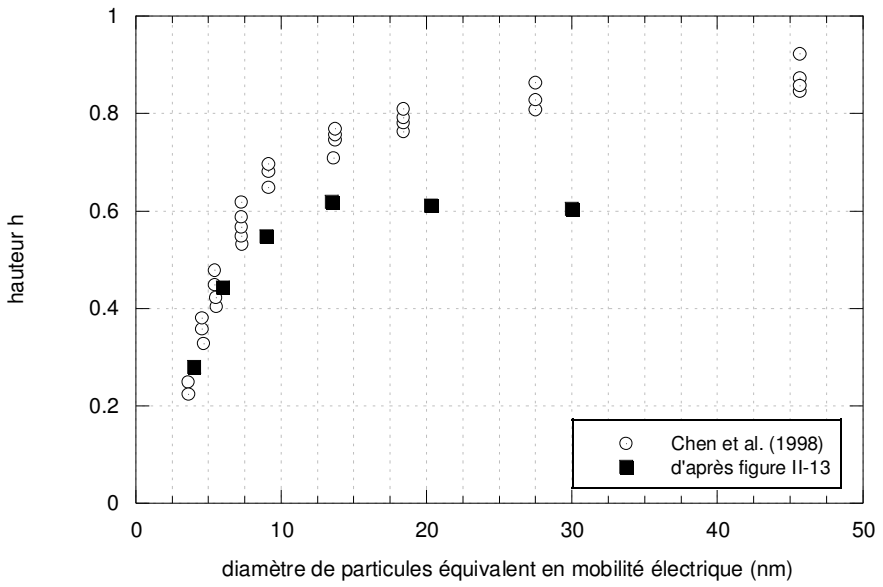


Figure II-14 : Comparaison des valeurs obtenues pour h aux points donnés par Chen et al. (1998)

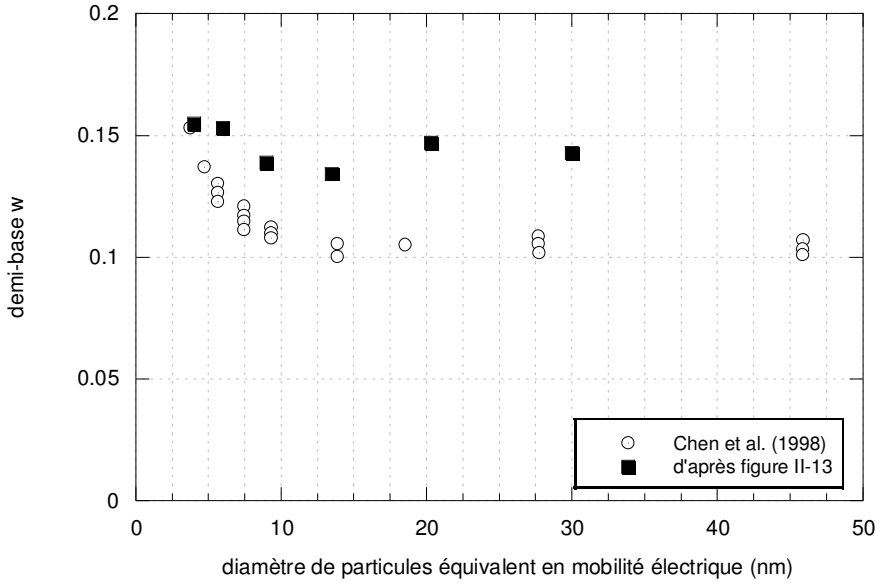


Figure II-15 : Comparaison des valeurs obtenues pour w aux points donnés par Chen et al. (1998)

2.4. Incidence de la nature du gaz porteur

Un facteur important pouvant être source d'erreurs au niveau du DMA est lié à la présence d'argon, inhérente à l'utilisation du générateur d'aérosols GFG-1000. En effet, afin que le débit de sheath air q_{sh} soit égal à q_{ex}, celui-ci (qui, pour rappel, permet de fixer la vitesse moyenne de l'aérosol le long du DMA) recircule en boucle et est régulé par un débitmètre interne à l'appareil fixant la vitesse de rotation de la sheath pump (figure II-7). Ce débitmètre a été étalonné par le constructeur pour de l'air, et non un mélange air/argon, dont les proportions respectives vont varier en fonction des conditions opératoires du générateur (or, du fait de son recyclage, q_{sh} va progressivement atteindre la même « composition chimique » que q_a). L'incidence de la présence d'argon sur le nano-DMA est illustrée figure II-16. Le débit réel circulant dans l'appareil a été mesuré à l'aide d'un compteur volumétrique.

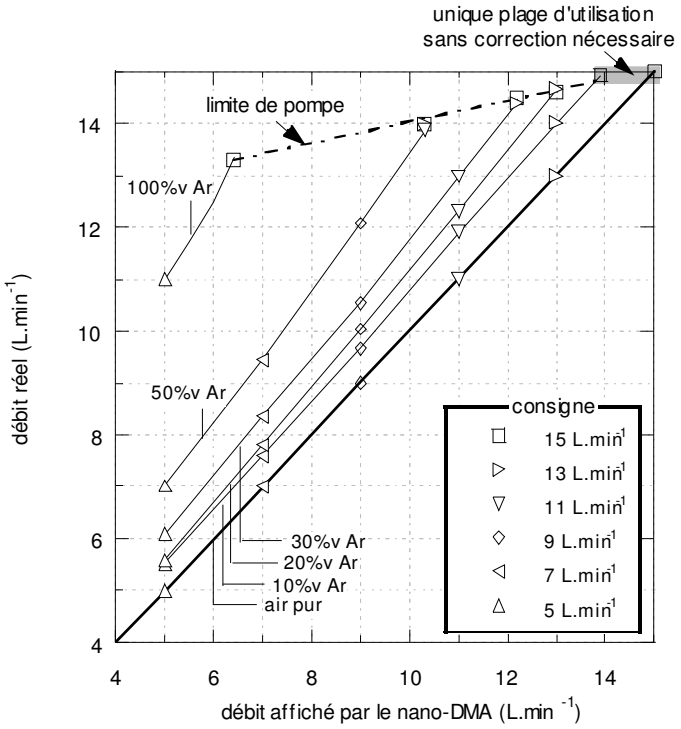


Figure II-16 : Influence de l'argon contenu dans l'aérosol sur le sheath flowrate du nano-DMA

Le débit affiché par le moniteur LCD du classificateur électrostatique (plateforme de commande du DMA) correspond généralement à la consigne fixée, mais le débit circulant dans la boucle est en réalité supérieur à cette dernière. Cela tend à laisser penser que l'appareil fonctionne correctement, alors que le débit de sheath air est sous-estimé, en raison du débit d'argon mal pris en compte par le système de régulation. Ce décalage est loin d'être anodin puisque, comme nous l'avons vu précédemment, la mobilité, et donc le diamètre de particules sélectionné, dépendent directement, pour une tension donnée, de ce débit d'accompagnement. Dès lors, une valeur de débit plus haute que celle paramétrée aboutit à la sélection de particules plus petites que celles attendues. Nous avons calculé que pour une proportion de 10 % d'argon, le diamètre de particules sortant du DMA est inférieur d'au moins 5 % à la valeur affichée sur l'écran LCD ; cet écart sera d'autant plus important que la proportion d'argon augmente. Il est à noter également que lorsque celle-ci est trop importante, la pompe ne parvient plus à répondre à la consigne (exemple : 15 $L.min^{-1}$), certainement parce que sa

vitesse maximale de rotation est déjà atteinte (symbolisée en pointillés sur la figure II-16). Cette limitation de la pompe n'a pas été observée sur le DMA plus récent prêté par TSI®, mais la problématique reste la même : le débit affiché, égal à la consigne (exemple : 15 $L.min^{-1}$), demeure inférieur au débit circulant réellement dans l'appareil (16 à 17 $L.min^{-1}$ environ).
Afin d'éviter des erreurs d'interprétation ou le recalcul du diamètre effectivement sélectionné, nous nous sommes efforcés de travailler avec un aérosol contenant au maximum 10 % d'argon, pour une consigne de débit de recirculation au sein du DMA de 15 $L.min^{-1}$. En effet, pour cette valeur et sur la plage 0-10% d'argon, ce débit est bien atteint, même si le classificateur indique le contraire. Le diamètre de particules affiché est donc bien le bon.

3. Caractérisation des aérosols générés par le GFG-1000

Le montage expérimental utilisé pour mesurer les distributions granulométriques générées par le Palas® GFG-1000 est schématisé figure II-17.

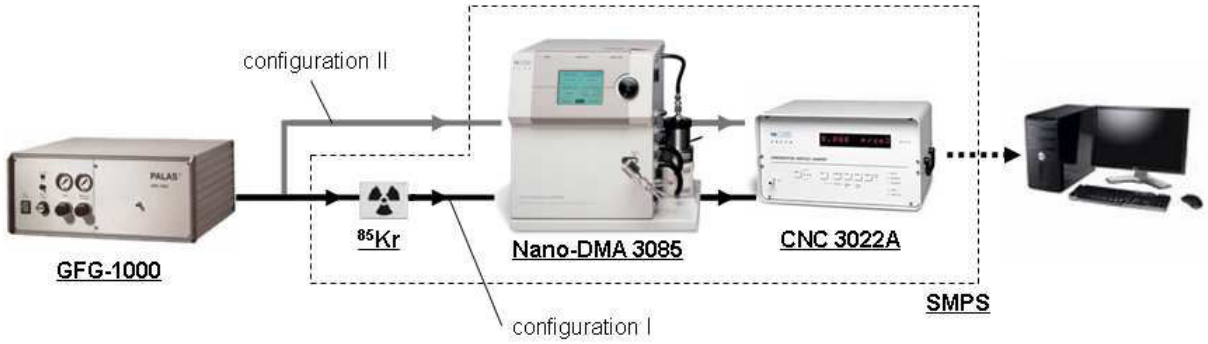


Figure II-17 : Montage utilisé pour la caractérisation des aérosols générés par le GFG-1000

Lorsque le CNC 3022A est connecté au DMA, lui-même relié en amont à la source ^{85}Kr, l'ensemble constitue ce que l'on appelle un SMPS (pour Scanning Mobility Particle Sizer). Ce «4ème » appareil mesure directement la distribution granulométrique d'un aérosol. Pour ce faire, le CNC pilote le DMA et lui fait balayer automatiquement une plage de tension, autrement dit de diamètre de particules [d'abord de façon croissante (up scan), puis décroissante (down scan)], en un temps et à une vitesse donnés. Connaissant ce temps et cette vitesse, la mesure continue de la concentration particulaire en sortie de DMA permet, à partir du logiciel AIM 7.2, de remonter à la distribution granulométrique de la plage balayée. Nous n'avons cependant pas utilisé ce mode automatique, pour plusieurs raisons. Tout d'abord, si pour redéterminer la distribution en amont de SMPS, le logiciel AIM tient compte de l'efficacité de comptage du CNC (figure II-10) et de l'équilibre de Boltzmann atteint dans la source ^{85}Kr (figure II-4), il ne corrige en revanche pas la concentration mesurée des pertes en particules occasionnées dans le DMA (hauteur h de la fonction de transfert ; figures II-13 et II-14). Même si ces dernières étaient négligeables (ce qui n'est pas le cas), les distributions granulométriques données par AIM lorsque nous by-passons la source ^{85}Kr (afin de déterminer la fraction « naturellement » chargée de l'aérosol produit par le générateur Palas® ; configuration II de la figure II-17) seraient de toute façon fausses, l'équilibre de Boltzmann n'ayant pas lieu d'être pris en compte dans une telle configuration. Enfin, Huang et al. (2007) ont montré qu'un temps de down scan trop court (et donc une vitesse de balayage trop rapide) pouvait entraîner l'apparition de pics de concentrations en fines particules totalement fictifs,

rendant la distribution granulométrique mesurée erronée (à noter que ce dernier point était déjà souligné dans les annexes de la documentation technique du SMPS). Afin d'éviter l'ensemble de ces erreurs, nous avons choisi de balayer manuellement les plages d'intérêt, et de recalculer les concentrations particulaires effectives en sortie de générateur C_{eff} pour chaque diamètre sélectionné comme suit :

$$C_{eff} = \frac{C_{mes}}{h\ \varepsilon_{CNC}} \qquad \text{(II-9)}$$

dans le cas de la concentration en particules chargées (configuration II de la figure II-17), avec C_{mes}, la valeur donnée par le CNC, et :

$$C_{eff} = \frac{C_{mes}}{h\ \varepsilon_{CNC}\ g(N = \pm 1)} \qquad \text{(II-10)}$$

dans le cas de la concentration en particules totale (configuration I).
Le terme $g(N = \pm 1)$ permet de tenir compte du fait que seule la fraction positive (ou négative, selon le sens du champ électrique créé dans le DMA) de l'aérosol à l'équilibre de Boltzmann (en sortie de source ^{85}Kr) est échantillonné par q_m (figure II-5) et va au CNC. Les valeurs prises pour h sont celles que nous avons mesurées pour notre DMA (carrés noirs figure II-14).
La figure II-18 montre la différence entre les concentrations mesurées au CNC et les concentrations totales en particules estimées à partir de l'équation (II-10). A titre de comparaison, l'allure de la courbe qu'aurait donnée le SMPS en mode automatique est également représentée (en supposant l'absence de pic dû à un temps de down scan trop court).

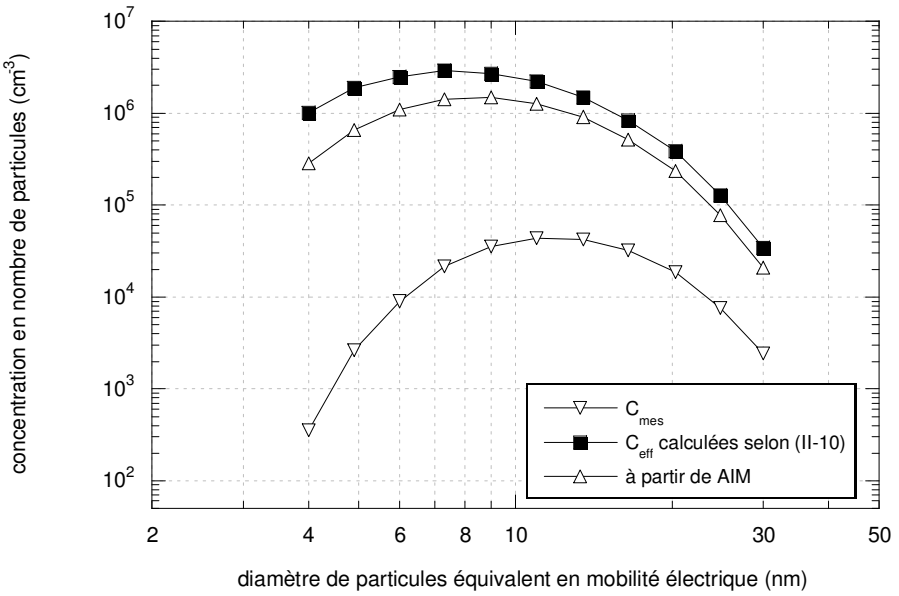


Figure II-18 : Comparaison entre les concentrations en particules mesurées au CNC 3022A et celles effectives en amont de SMPS

Ne prenant pas en compte les pertes dans le DMA, le logiciel AIM sous-estime les concentrations en particules présentes en amont du SMPS, autrement dit en sortie de générateur. Comme expliqué plus haut, ceci n'a pas d'incidence directe sur les mesures

d'efficacité des filtres, puisque les concentrations qui nous intéressent alors sont celles obtenues taille par taille en sortie de DMA. Elle en a, en revanche, sur la caractérisation des aérosols produits par notre générateur : tandis que le diamètre moyen de la distribution granulométrique générée est vraisemblablement proche de 7 nm, le mode automatique du SMPS l'aurait davantage situé aux alentours de 9 nm.

Les distributions granulométriques obtenues pour des électrodes de cuivre et des électrodes de graphite, et calculées selon (II-9) et (II-10), sont représentées figure II-19.

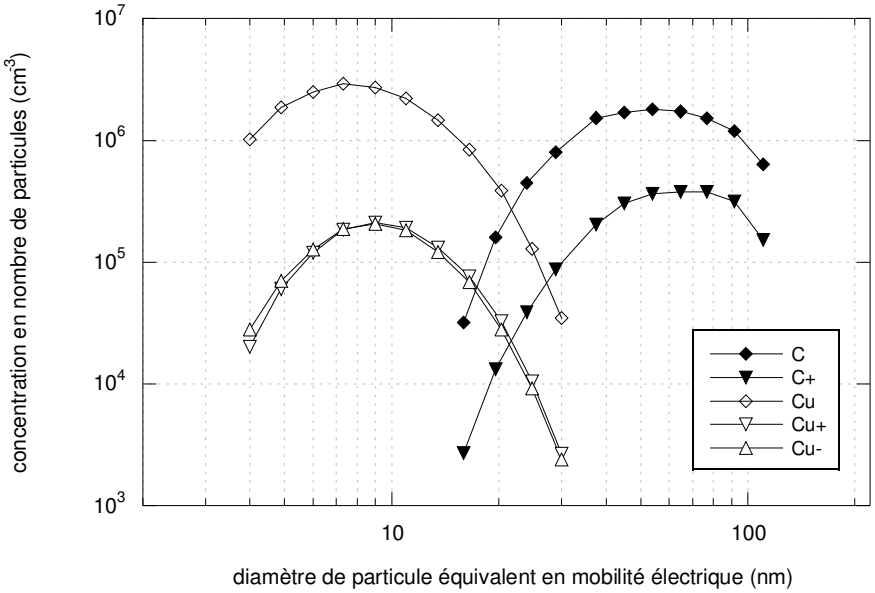


Figure II-19 : Influence de la nature chimique des électrodes sur les caractéristiques de l'aérosol produit par le GFG-1000 (conditions opératoires du générateur : P_{Ar} = 1 bar, P_{air} = 17 psi, f = 500)

Nous retrouvons notamment les résultats de Evans et al. (2003) et Roth et al. (2004) : à conditions opératoires identiques, l'aérosol de cuivre produit est nettement plus fin que celui de carbone. Nous pouvons également voir qu'une partie des particules générées par le GFG-1000 est naturellement porteuse de charge, positive ou négative (voir aussi annexe E). Bien que leur proportion soit relativement faible, ceci nous permet néanmoins, comme expliqué précédemment, de réaliser l'étape de sélection diamètre par diamètre sans passer par la source ^{85}Kr, et de conserver cette dernière pour une neutralisation post-sélection (et tester ainsi l'efficacité de nos filtres vis-à-vis d'aérosols globalement neutres, à l'instar des autres auteurs de la littérature). Enfin, on remarquera que les concentrations en aérosol obtenues en sortie de DMA de cette façon sont peu différentes, voire supérieures aux concentrations en particules sélectionnées de manière « classique » (source puis DMA, id est production d'aérosols chargés). Ceci s'explique par le fait que le DMA ne va sélectionner que les fractions monochargées, positives ou négatives, de l'aérosol en sortie de source ^{85}Kr (équilibre de Boltzmann). Or, cette fraction représente, en-dessous de 20 nm, moins de 10 % du nombre total de particules, quel que soit le diamètre de particules d_p. Par exemple, seuls 4 % de l'ensemble des particules de 10 nm traversant la source vont être chargées unitairement (figure II-4) puis sélectionnées par le DMA. Dans le cas de la sélection sans source en revanche, les quelques 10^5 particules de 10 nm par cm^3 chargées (+1) en sortie du

Palas® (figure II-19) vont toutes sortir du DMA, à la fonction de transfert près, avant d'être neutralisées (on suppose qu'aucune particule n'est perdue dans la source par dépôt).

Comme nous l'avons vu précédemment, la présence d'argon dans l'aérosol primaire est susceptible, si l'on n'y prend garde, de poser des soucis de sélection au niveau du DMA. Ceci aurait pu être simplement évité, dans le cas des électrodes de cuivre, en remplaçant l'argon par du diazote, aucun composé « exotique » résultant d'une quelconque réaction chimique n'étant attendu avec Cu. L'argon a cependant été conservé pour deux raisons : la première est la volonté de comparer l'efficacité de nos filtres pour des particules de nature différente mais obtenues dans des conditions similaires. La seconde est que l'aérosol de cuivre généré par le GFG-1000 sous flux de N_2 est plus gros que dans le cas de l'argon (figure II-20). Cette différence a son importance car, comme nous allons le voir dans la partie suivante, les pertes en particules en chaque point du banc sont d'autant plus grandes que le diamètre des particules est petit. Il est donc essentiel de travailler avec un aérosol de départ aussi concentré que possible en diamètres les plus fins, sous peine de ne pouvoir réaliser de mesure de perméance statistiquement représentative pour les très petites particules.

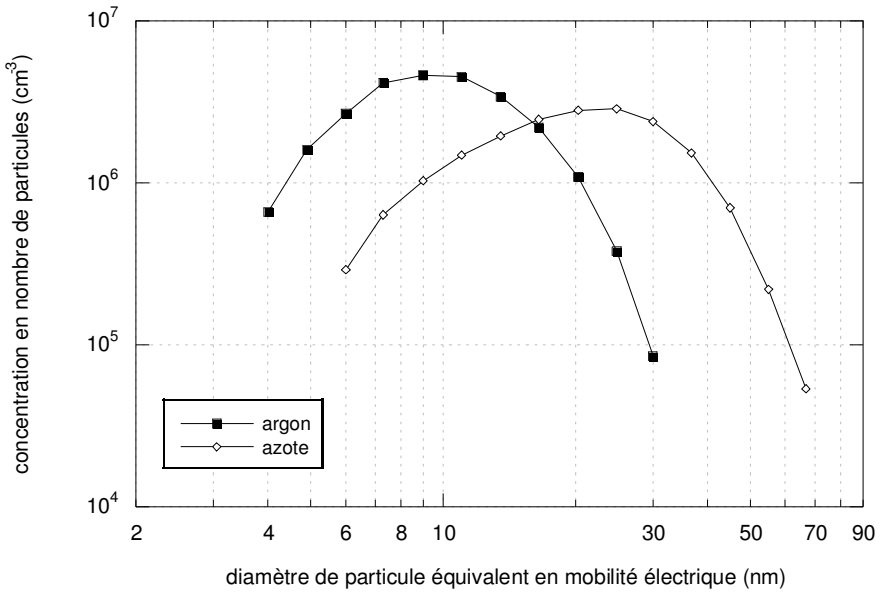


Figure II-20 : Influence du gaz utilisé pour la production de nanoparticules (conditions opératoires du générateur : $P_{Ar} = P_{N2} = 1$ bar, $P_{air} = 9$ psi, f = 700)

4. Limites dues à la géométrie du banc d'essai et au protocole opératoire

4.1. Rapport Γ

Au-delà des spécificités de chaque appareil, nos capacités de mesure de perméance dans le domaine ultrafin vont également être « limitées » par le banc lui-même, et le protocole opératoire suivi (même si ce dernier demeure vraisemblablement le plus approprié).
Comme indiqué dans la partie 1, la configuration en double-conduite préconisée par Heim et al. (2005) permet d'obtenir directement la perméance du filtre, sans avoir à déterminer celle du porte-filtre seul. Cela suppose néanmoins que les deux conduites soient parfaitement identiques en termes de dépôt de particules. Afin de s'en assurer, la concentration particulaire

en sortie de chaque conduite a été mesurée, selon le même protocole que pour la perméance d'un filtre, la conduite-test étant simplement dépourvue de média ; un terme Γ, égal au rapport entre la quantité de particules en sortie de la conduite A sur celle de la conduite B, peut ainsi être défini. Or, des écarts ont été observés, autrement dit Γ n'est pas toujours égal à 1 (figure II-21), et ce malgré la symétrie apparente du système.

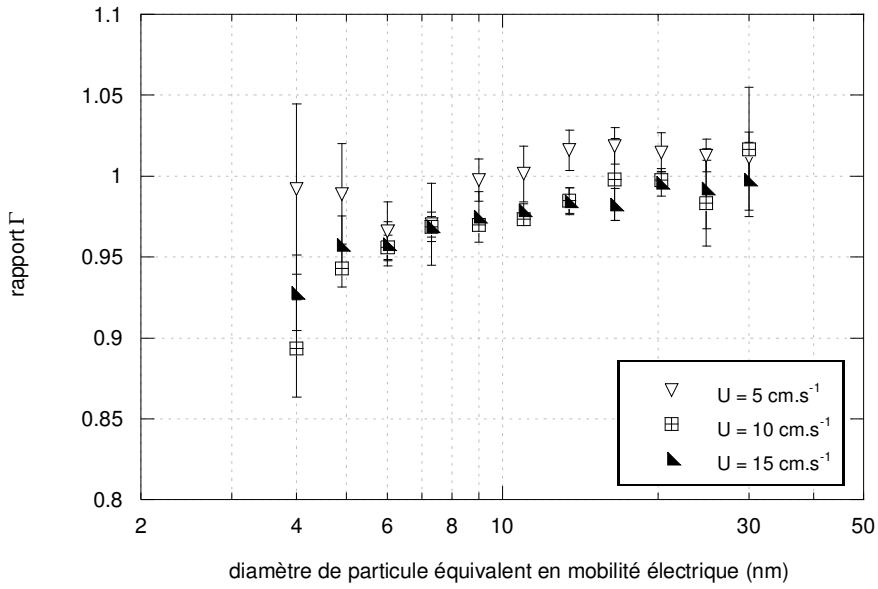


Figure II-21 : Rapport Γ en fonction de la vitesse de filtration U et du diamètre d'aérosol sélectionné [particules chargées (+1)]

Après avoir interchangé 2 à 2 les différents éléments constitutifs des conduites (longueurs droites, porte-filtres, coudes), les (premières) vannes utilisées ont été identifiées comme les principales responsables de ces écarts. Bien qu'ils n'excèdent pas les 10 %, ces derniers peuvent, s'ils ne sont pas pris en compte, avoir des conséquences spectaculaires sur les résultats présentés, et surtout leur interprétation. A titre d'illustration, sont représentées figure II-22 les valeurs de perméance mesurée et corrigée dans le cas d'une simple grille, pour laquelle le modèle de Cheng et Yeh (1980) devrait a priori fournir une bonne estimation si le seul mécanisme à l'origine de la collecte des particules est la diffusion brownienne (voir chapitre I). $P_{mesurée}$ et $P_{corrigée}$ sont liées par la relation :

$$P_{corrigée} = P_{mesurée} \times \Gamma \qquad \text{(II-11)}$$

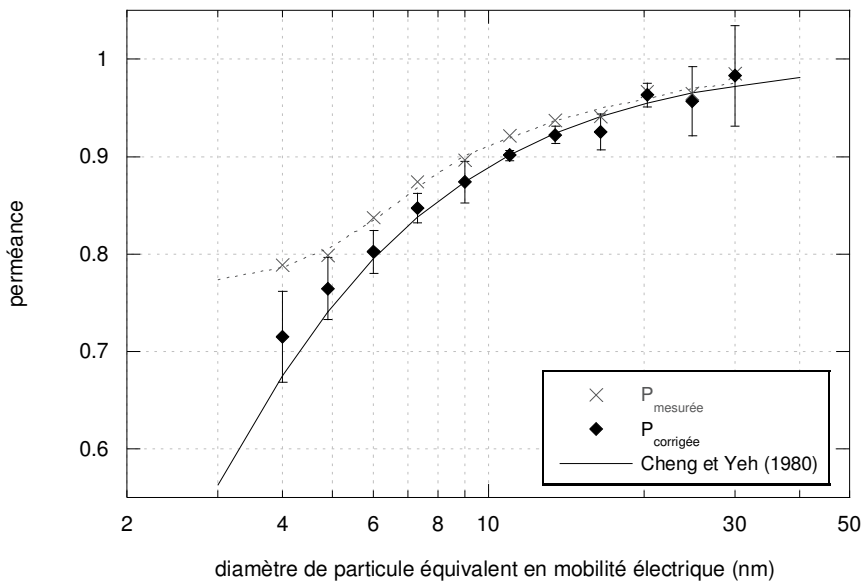


Figure II-22 : Influence de Γ sur la mesure de perméance d'une grille (U = 15 cm.s^{-1})

Les points non-corrigés présentent un point d'inflexion très net aux alentours de 5-6 nm. Par conséquent, sans multiplication de $P_{mesurée}$ par Γ, il aurait été facile d'attribuer ce phénomène à un début de rebond thermique, à l'image des résultats de Ichitsubo et al. (1996), surtout en comparant ces points expérimentaux « bruts » à la courbe théorique obtenue à partir de l'expression de Cheng et Yeh (1980). Après correction, nos valeurs de perméance sont en parfait accord avec les points théoriques.

Afin d'éviter un terme correctif trop important, et dans la perspective d'une observation non faussée d'un éventuel rebond thermique, nous avons rapidement remplacé les vannes à siège incliné électro-pneumatiques initialement utilisées par de simples vannes manuelles à boisseau sphérique. De fait, Γ a retrouvé, quelle que soit la vitesse de filtration U, une allure « normale », c'est-à-dire proche de 1 pour tout diamètre de particules. Par précaution, nous avons néanmoins continué à mesurer régulièrement ce terme Γ, et pris en compte sa valeur dans le calcul de la perméance (et de son incertitude). Afin de ne pas surcharger les figures des chapitres III, IV et V, l'ensemble des perméances présentées sera des $P_{corrigée}$.

4.2. Agglomération et dépôt de particules

L'observation d'un terme Γ différent de 1 est intimement lié, outre à un problème de géométrie de vannes, au dépôt des particules au sein de la double-conduite. Aussi avons-nous réalisé une première estimation de ce dépôt le long de l'une des deux conduites (conduite A), au travers de l'efficacité de transport E_T (voir protocole en annexe H) : E_T est définie comme le rapport entre la quantité de particules récupérée en sortie d'une canalisation sur la quantité de particules à l'entrée. Dans le même temps, ces mesures nous ont permis de nous assurer qu'aucune agglomération, qui modifierait la granulométrie de nos aérosols monodispersés, n'avait lieu entre l'entrée des particules dans la double-conduite et le prélèvement vers le CNC, situé en bout de canalisation. Ce dernier point est cohérent avec les ordres de grandeur de temps t et concentration C donnés par Renoux et Boulaud (1998), en-dessous desquels la coagulation peut être négligée (t ≈ 15 min et C ≈ 10^6 particules.cm^{-3}).

Pour une canalisation rectiligne de longueur L_c, et dans le cas d'un débit Q d'aérosol soumis à la seule diffusion brownienne, Gormley et Kennedy (1949) ont proposé les expressions suivantes pour E_T. Si $\beta < 0{,}0312$ avec $\beta = \pi D L_c / Q$, alors :

$$E_{T,G\&K} = 1 - 2{,}56\,\beta^{2/3} + 1{,}2\,\beta + 0{,}177\,\beta^{4/3} \qquad \text{(II-12)}$$

Si $\beta \geq 0{,}0312$:

$$E_{T,G\&K} = 0{,}819\,\exp(-3{,}657\,\beta) + 0{,}097\,\exp(-22{,}3\,\beta) + 0{,}032\,\exp(-57\,\beta) \qquad \text{(II-13)}$$

Alonso et Alguacil (2007) ont étendu ce modèle au cas d'un aérosol monochargé, dont les particules de même signe se repoussent mutuellement :

$$E_{T,A\&A} = \frac{E_{T,G\&K}}{1 - 0{,}49\,V_S \dfrac{1 - E_{T,G\&K}}{\ln E_{T,G\&K}}} \qquad \text{(II-14)}$$

avec

$$V_S = \frac{\pi}{4\,\varepsilon_0}\,\frac{e\,Z_p\,C_0\,L_c\,d_c^2}{Q} \qquad \text{(II-15)}$$

où C_0 désigne la concentration en nombre de particules chargées à l'entrée de la canalisation de diamètre d_c. Pour des aérosols peu concentrés (C_0 faible, inférieure à 10^5 particules.cm^{-3} environ), la différence entre (II-12)/(II-13) et (II-14) reste minime.

La conduite A présentant un certain nombre d'accidents (coudes et élargissements/rétrécissements au niveau du porte-filtre notamment), l'accord entre nos valeurs expérimentales et les modèles présentés ci-avant, qui supposent une conduite droite et uniforme en diamètre, risque d'être limité (les accidents entraînant des pertes supplémentaires). La figure II-23 présente les résultats obtenus avec des particules de cuivre chargées positivement, pour une vitesse en fût vide U de 5, 10 et 15 cm.s^{-1} (porte-filtres de 60 mm de diamètre – annexe I). Les valeurs calculées à partir de l'équation (II-14) avec d_c = 25 mm, $L_c \approx 2$ m et pour U = 5 cm.s^{-1} sont également tracées comme cas limite ; en effet, plus U sera petite, plus le dépôt sera important, et donc plus l'efficacité de transport E_T sera faible.

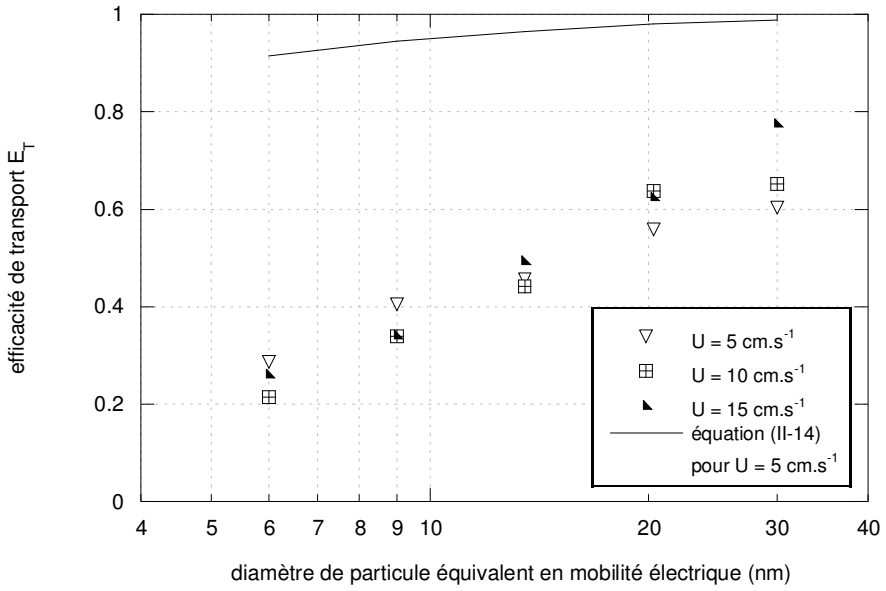


Figure II-23 : Efficacité de transport au sein de la conduite A

Comme on pouvait si attendre, plus le diamètre de particules est petit, plus le dépôt au sein des canalisations est grand. Ceci s'explique par le fait que plus d_p diminue, plus le coefficient de diffusion D de la particule augmente [équation (I-17)]. En revanche, et en contradiction avec les modèles présentés, l'efficacité de transport mesurée dépend très peu du débit d'écoulement de l'aérosol. Nos points sont par ailleurs très en-dessous des valeurs théoriques calculées. Comme énoncé plus haut, ceci est certainement dû aux différents accidents présents le long de la conduite. De plus, des pertes importantes doivent avoir lieu au sein de la canne de prélèvement alimentant le CNC (section de passage plus petite que la conduite A puisque d_c = 8 mm). Enfin, des pertes par thermophorèse ne sont pas exclues [Zheng (2002)]. Une étude plus approfondie du dépôt élément par élément permettrait de confirmer ces différentes hypothèses, et d'estimer les pertes de manière plus « robuste » et détaillée. Nous tirerons cependant de nos mesures la relation empirique suivante :

$$E_T = 0{,}262 \ln (d_p) - 0{,}205 \qquad \text{(II-16)}$$

avec d_p en nm, et quelle que soit U. Le coefficient de corrélation R^2 de (II-16) est de 0,933.

4.3. Pertes totales

Les pertes par dépôt le long des conduites peuvent donc être très importantes (près de 80 % pour un aérosol de 6 nm). Ajoutées aux pertes déjà subies lors de la phase de sélection (discutées dans la partie 3), rares vont donc être les particules générées par le GFG-1000 à arriver jusqu'au photodétecteur du CNC, placé en sortie de double-conduite. L'ensemble du banc ayant été caractérisé, nous pouvons estimer cette proportion de particules. La figure II-24 récapitule de façon schématique les deux configurations utilisées au cours de cette étude (génération d'aérosols chargés ou génération d'aérosols globalement neutres).

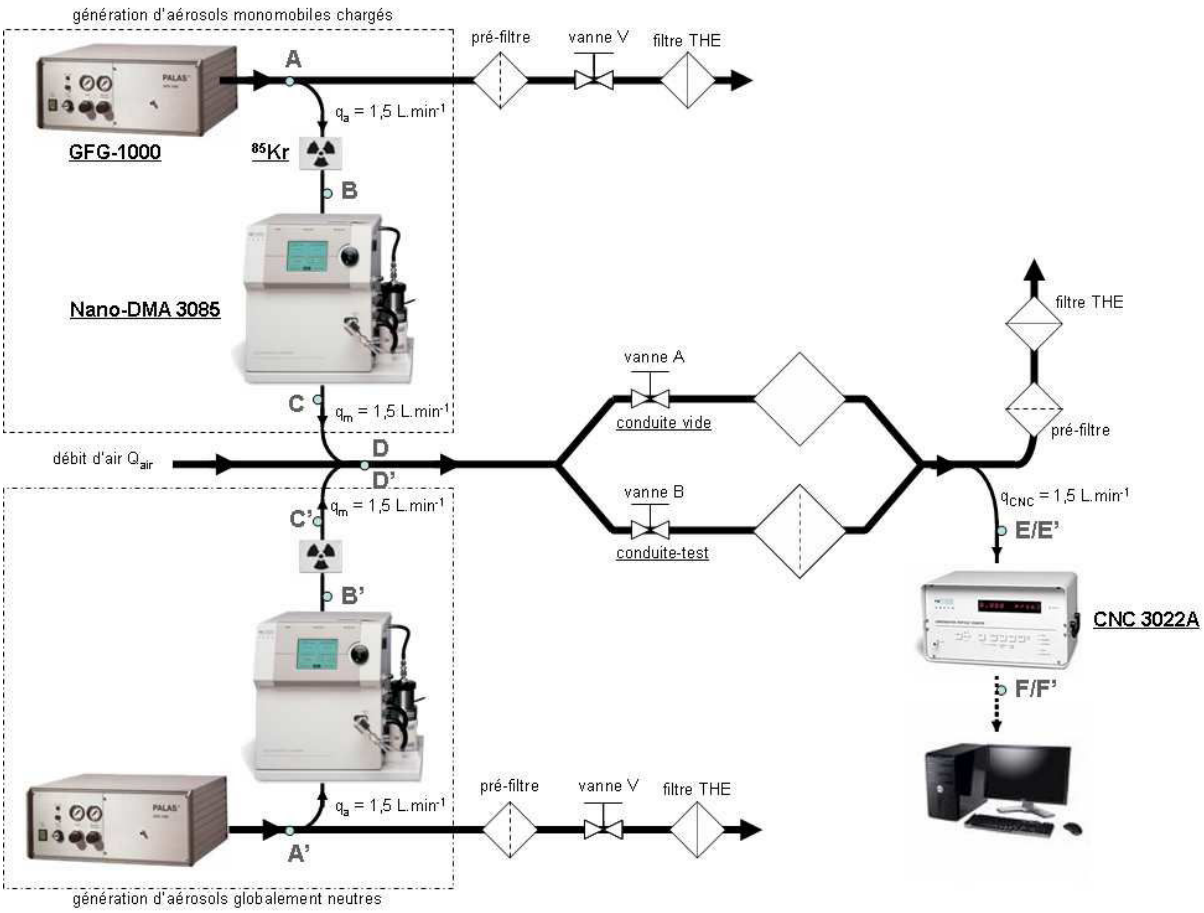


Figure II-24 : Vue schématique des dispositifs expérimentaux utilisés

Dans un premier cas, l'aérosol échantillonné est d'abord neutralisé (marquage), puis une taille de particules est sélectionnée afin de « produire » un aérosol monomobile unichargé. Pour obtenir un aérosol monodispersé globalement neutre en revanche, nous sélectionnons déjà les particules chargées de l'aérosol généré par le GFG-1000, puis celles-ci sont envoyées au travers de la source ^{85}Kr. Dans les deux cas, un débit d'air sec et parfaitement filtré Q_{air} complète les 1,5 L/min d'aérosol envoyés dans la double-conduite afin d'atteindre la vitesse de filtration U voulue au niveau du média.

Différents points (A, B, C,… et A', B', C',…) peuvent être matérialisés figure II-24. Partant de la distribution granulométrique type générée par le GFG-1000 en A ou A' (figure II-18), l'évolution de la concentration en particules le long de l'installation est représentée figure II-25, pour une vitesse au porte-filtre de 5 cm.s^{-1}.

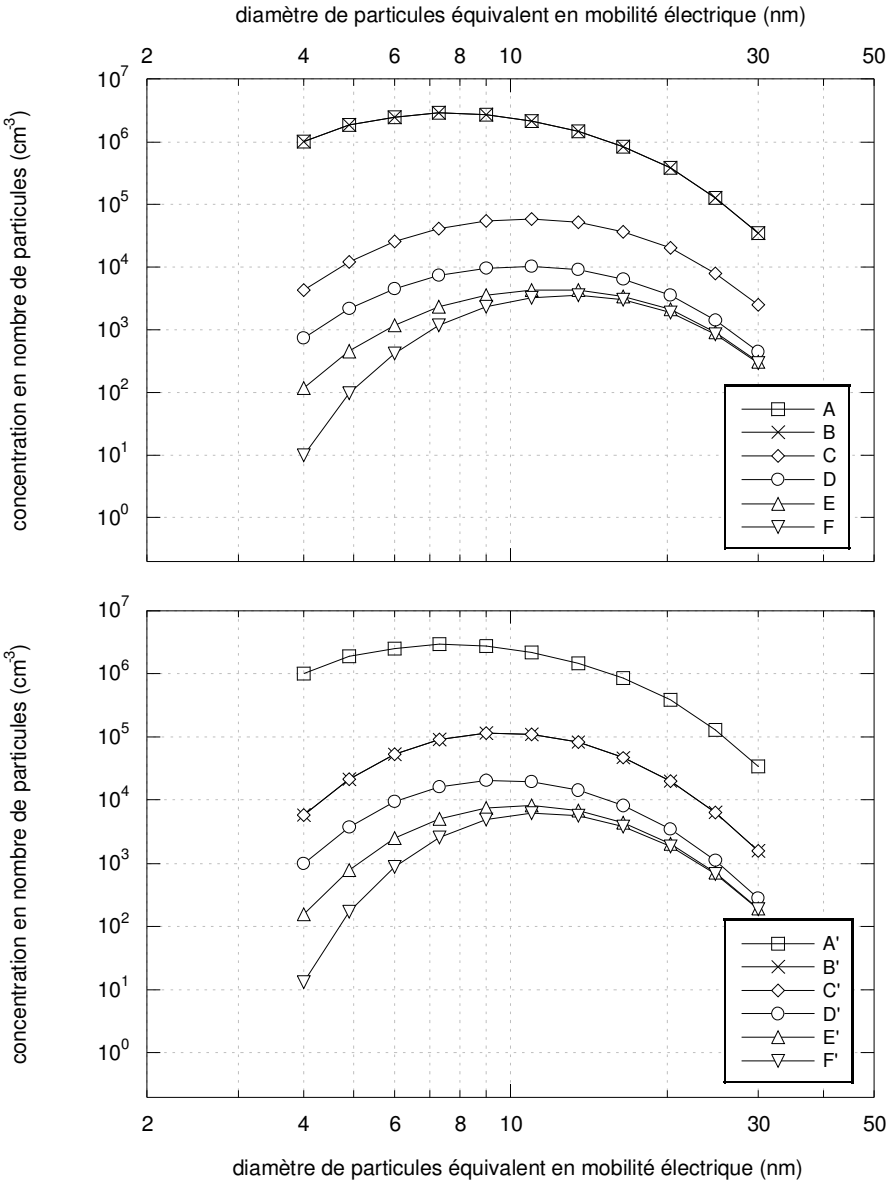


Figure II-25 : Evolution de la concentration en particules le long du banc d'essai – U = 5 cm.s^{-1}
(en haut : génération de particules chargées (+1) – en bas : génération d'aérosols globalement neutres)

Le cheminement de A à C ou de A' à C' a été vu en détails précédemment (équilibre de Boltzmann, le cas échéant, et fonction de transfert du DMA). Les passages respectifs de C à D et de C' à D' sont ensuite une simple dilution, ici d'un facteur 5,7 (q_m = 1,5 L.min^{-1} et U = 5 cm.s^{-1} donc Q_{air} = 7 L.min^{-1}). E et E' découlent de D et D' via l'expression (II-16). Enfin, les courbes F et F' représentent les valeurs qui seront vraisemblablement affichées par le CNC et transmises au logiciel d'acquisition du PC. F et F' sont reliés à E et E' par l'efficacité de comptage ε_{CNC} (figure II-4), ce qui explique pourquoi, au-dessus de 20 nm, les points E/F et E'/F'sont quasiment confondus (ε_{CNC} proche de 1). Notons que quel que soit le diamètre, les concentrations en F et F' sont inférieures à 10^4 particules.cm^{-3}, ce qui respecte la précaution d'usage que nous nous sommes fixés, à savoir rester en mode de comptage « dénombrement » (mode de comptage le plus fiable ; figure II-11).

Ainsi, les pertes en particules tout au long du banc d'essai sont extrêmement élevées (facteur 100 au minimum). Elles sont en outre d'autant plus importantes que le diamètre de particules est petit, d'où l'importance de générer dès le départ un aérosol polydispersé le plus riche possible en très fines particules (figure II-20).

4.4. Perméance limite mesurable

TSI® avance une limite basse de détection du 3022 en termes de concentration de 0,01 particules.cm^{-3} (bruit de fond). Compte tenu de la diminution de l'efficacité de comptage de l'appareil en-dessous de 20 nm (figure II-10), cette valeur nous paraît pour le moins optimiste. C'est pourquoi, arbitrairement, nous ne retiendrons une valeur de C_{aval} que si elle est supérieure à 0,1 particules.cm^{-3}. La valeur limite de perméance P_{lim} mesurable dans ces conditions, pour des aérosols globalement neutres en-dessous de 30 nm, est représentée figure II-26. P_{lim} est obtenue en divisant 0,1 par les points de la courbe F' (figure II-25).

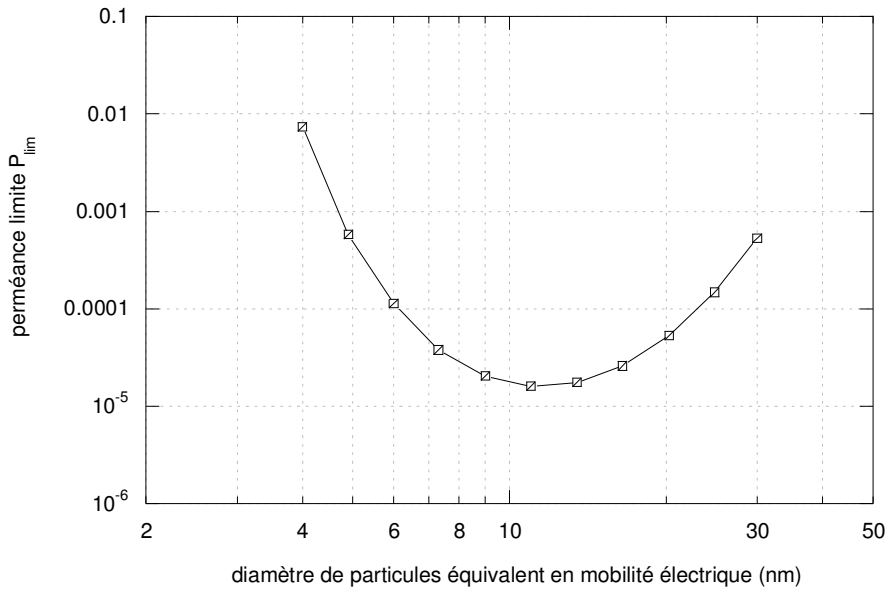


Figure II-26 : Valeur limite de perméance mesurable en-dessous de 30 nm

En-dessous de 13 nm, la frontière P_{lim} remonte, les concentrations en particules diminuant au fur et à mesure que l'aérosol est plus fin. Une perméance inférieure à 10^{-2} pour un aérosol de 4 nm par exemple ne nous sera donc pas accessible…. Ainsi, s'il s'avère trop efficace, aucune mesure de concentration statistiquement représentative ne sera possible, en-dessous d'un certain diamètre, à l'aval du média testé.

5. Synthèse

En conclusion, les différents médias retenus pour cette étude vont pouvoir être testés vis-à-vis d'aérosols monochargés (positivement ou négativement selon la tension appliquée au DMA), mais aussi vis-à-vis d'aérosols à l'équilibre de Boltzmann (globalement neutres). Quelle que

soit la méthode de sélection/génération suivie (voir positions respectives de la source ^{85}Kr et du nano-DMA sur la figure II-25), un certain nombre de précautions a été pris afin de proposer dans la suite de ce rapport des résultats de perméance fiables et rigoureux :

- la proportion d'argon dans l'aérosol généré n'excédait jamais 10 % et le débit de sheath air q_{sh} du DMA était systématiquement fixé à 15 $L.min^{-1}$ (afin d'assurer une sélection correcte du diamètre de particules souhaité)
- le rapport Γ entre les deux conduites du banc a été régulièrement vérifié (afin de tenir compte des différences de dépôt entre les deux canalisations),
- les concentrations mesurées par le CNC et utilisées pour le calcul de la perméance étaient comprises entre 0,1 et 10^4 $particules.cm^{-3}$ (afin d'avoir une quantité de particules détectées statistiquement fiable, et mesurée en single-count mode, et non de façon photométrique)
- enfin, les valeurs de perméance présentées sont la moyenne d'au moins trois séries de mesure, corrigées du terme Γ, dont l'incertitude est prise en compte dans le calcul de l'incertitude sur P (afin de s'assurer de la reproductibilité de nos résultats).

Chapitre III
-
Efficacité des Grilles

1. Présentation des médias

Les premiers médias testés au cours de cette étude sont de simples grilles, en acier inox (tamis) ou matières synthétiques, dont les caractéristiques physiques sont rassemblées dans le tableau III-1. Comme énoncé aux chapitres précédents, ce type de média est idéal pour l'observation d'un éventuel rebond thermique car il permet de s'affranchir d'un effet d'épaisseur qui pourrait masquer le phénomène.

Chacun de ces « filtres tissés » ou « maillages » est obtenu par entrecroisement, dans le même plan, de fils disposés dans le sens de la chaîne et de fils disposés perpendiculairement à ces fils de chaîne, dans le sens de la trame. Chaque fil de chaîne passe alternativement au-dessus et au-dessous de chaque fil de trame, et réciproquement (figure III-1). En termes de tissage, on parlera de toiles à armure unie (« plain weave » en anglais).

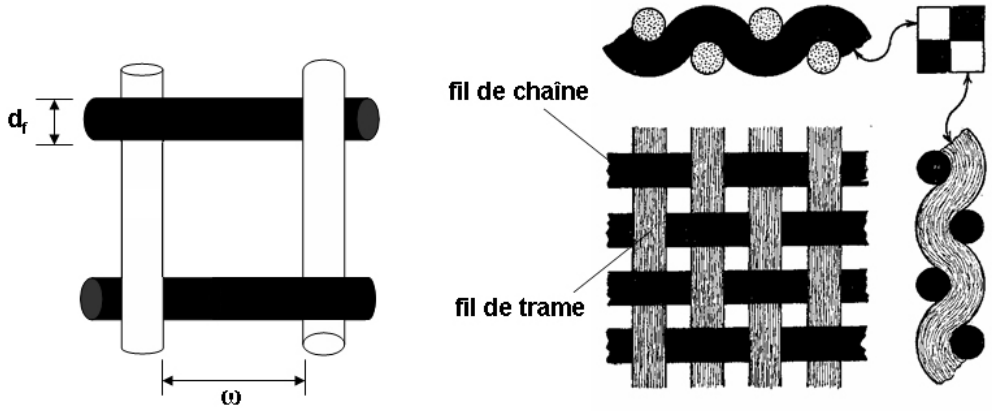


Figure III-1 : Motif de tissage des grilles utilisées

Tableau III-1 : Caractéristiques géométriques des grilles testées

nom du média	**inox 355**	**inox 150**	**inox 75**	**inox 40**	**inox 25**	**nylon 75**	**fluortex 150**
matériau			acier inox 316			polyamide	ETFE*
diamètre de fibres d_f (µm)	200	100	50	36	25	75	105
ouverture de maille ω (µm)	355	150	75	40	25	75	150
épaisseur Z (µm)	400	200	100	72	50	112,5	157,5
compacité α	0,28	0,31	0,31	0,37	0,39	0,39	0,32

*éthylène tétrafluoroéthylène

Le nombre composant le nom du média fait référence à l'ouverture de maille ω. Ainsi, malgré leur « homonymie », il conviendra de ne pas identifier la grille inox 75 à la grille nylon 75 : en effet, celles-ci n'ont pas le même diamètre de fibres d_f. De même, et bien qu'elles soient plus proches l'une de l'autre, les grilles inox 150 et fluortex 150 diffèrent par leur épaisseur.

Compte tenu de la rigidité des fils, nous avons supposé que l'épaisseur des grilles en acier inox était égale à deux fois leur diamètre de fibres. Pour les grilles en polyamide et ETFE en revanche, plus souples et « compressibles », Z est prise égale à 1,5 fois le diamètre de fibres, comme l'ont fait Heim et al. (2005). Les clichés obtenus au microscope électronique à balayage pour chacune des grilles sont disponibles en annexe J.

2. Filtration d'aérosols globalement neutres

2.1. Cas des grilles inox

La figure III-2 présente les perméances expérimentales P_{exp} obtenues pour les cinq grilles inox, à 5 cm.s^{-1}, dans le cas d'aérosols de cuivre à l'équilibre de Boltzmann (globalement neutres). Autrement dit, les particules sont d'abord sélectionnées à l'aide du nano-DMA, sans marquage préalable, puis l'aérosol traverse la source ^{85}Kr pour être « neutralisé ». Les courbes théoriques calculées à partir de l'expression de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980) sont également tracées. Pour la grille inox 40, des mesures ont également été réalisées entre 10 et 80 nm avec des particules de carbone (figure III-3).

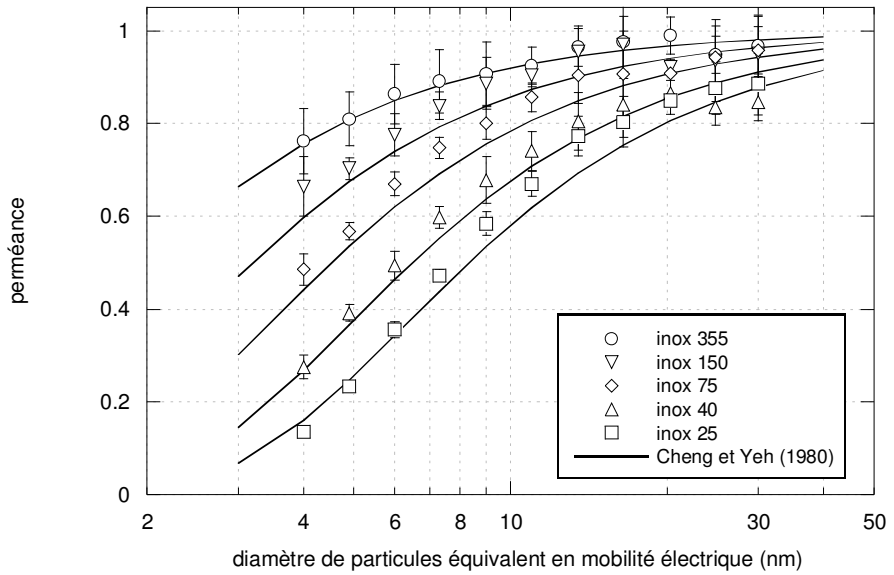


Figure III-2 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers de nos cinq grilles inox, à 5 cm.s^{-1}

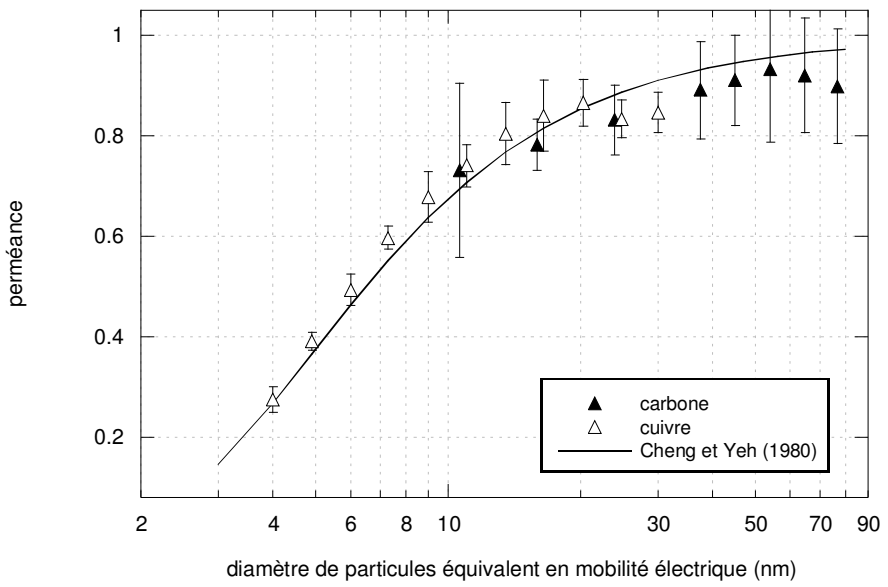


Figure III-3 : Perméance au travers de la grille inox 40 en fonction de la nature chimique des aérosols-tests, globalement neutres électriquement, à 5 cm.s^{-1}

Il apparaît clairement que la considération de la seule diffusion brownienne suffit à décrire convenablement la perméance des cinq grilles. L'accord entre nos valeurs expérimentales et le modèle de Cheng et Yeh (1980) est globalement satisfaisant. En outre, la nature chimique des particules ne semble pas avoir d'influence sur la perméance, et donc l'efficacité des médias. Ceci concorde parfaitement avec les travaux de Alonso et al. (1997) et Heim et al. (2005), qui ont testé le même type de médias, pour des particules d'argent et de NaCl (tableaux I-5 et I-6).

Les points des figures III-2 et III-3 sont de nouveau représentés figure III-4 en termes d'efficacité unitaire de fibre expérimentale η_{exp}, en fonction du nombre de Péclet Pe [expression (I-16)].

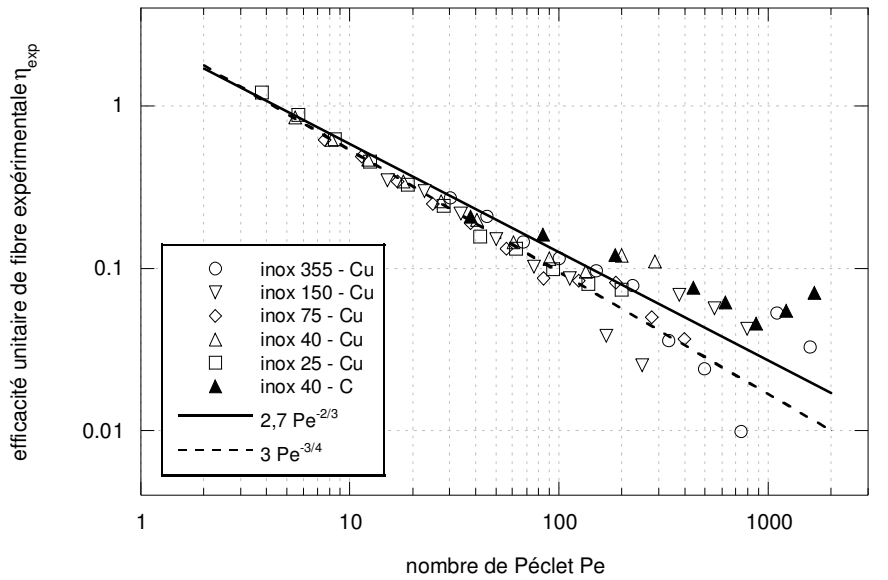


Figure III-4 : Efficacité unitaire de fibre expérimentale η_{exp} en fonction du nombre de Péclet Pe (grilles inox, 5 cm.s^{-1}, aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres)

η_{exp} est calculée à partir de P_{exp} via l'expression (III-1), issue de (I-6) :

$$\eta_{exp} = \frac{(\alpha - 1)\,\pi\, d_f}{4\,\alpha\, Z} \ln P_{exp} \qquad \text{(III-1)}$$

La dispersion des points de la figure III-4 est plus importante pour les nombres de Péclet supérieurs à 100 (particules les plus grosses). Il est intéressant de noter que cette limite Pe = 100 a également été relevée par Wang et al. (2007) dans le cas de filtres à fibres.

L'expression 2,7 $Pe^{-2/3}$ représente plutôt bien l'ensemble des résultats obtenus. A partir des valeurs de η_{exp} pour lesquelles Pe < 100, nous serions également tentés de proposer 3 $Pe^{-3/4}$. Dans tous les cas, aucune baisse (ou ne serait-ce qu'un ralentissement de hausse) de l'efficacité unitaire de fibre n'est observée lorsque le nombre de Péclet, et donc, toute chose restant par ailleurs égale, lorsque la taille des particules diminuent. Autrement dit, plus les particules sont petites, plus elles sont collectées efficacement. Aussi, pour les grilles inox, aucun phénomène de rebond thermique n'est observé sur l'ensemble de la plage d'étude, jusque 4 nm de diamètre.

2.2. Cas des grilles synthétiques

La même constatation peut être faite avec les grilles synthétiques (figures III-5 et III-6). Les particules les plus fines ne semblent pas sujettes au moindre effet « rebond » ; les valeurs de perméances obtenues auraient même tendance à être légèrement en-dessous des courbes théoriques.

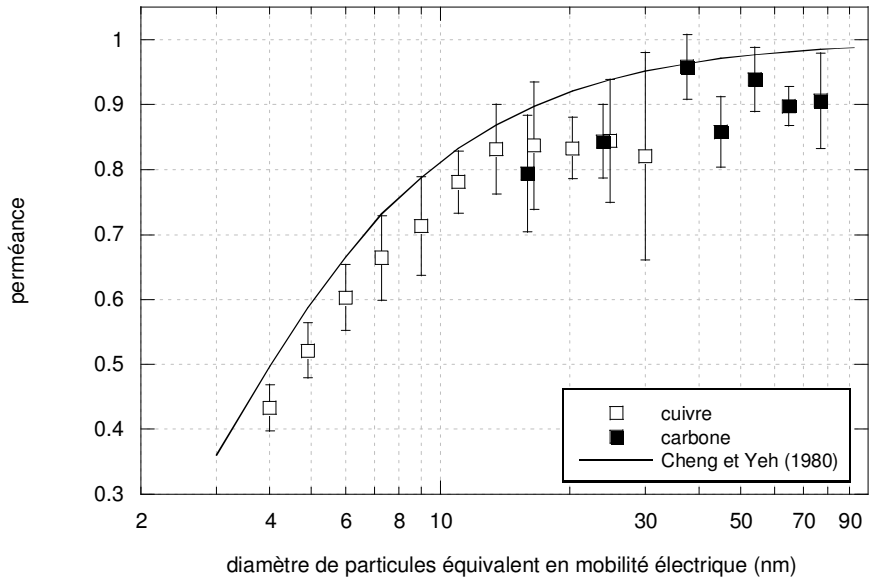


Figure III-5 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers de la grille nylon 75, à 5 $cm.s^{-1}$

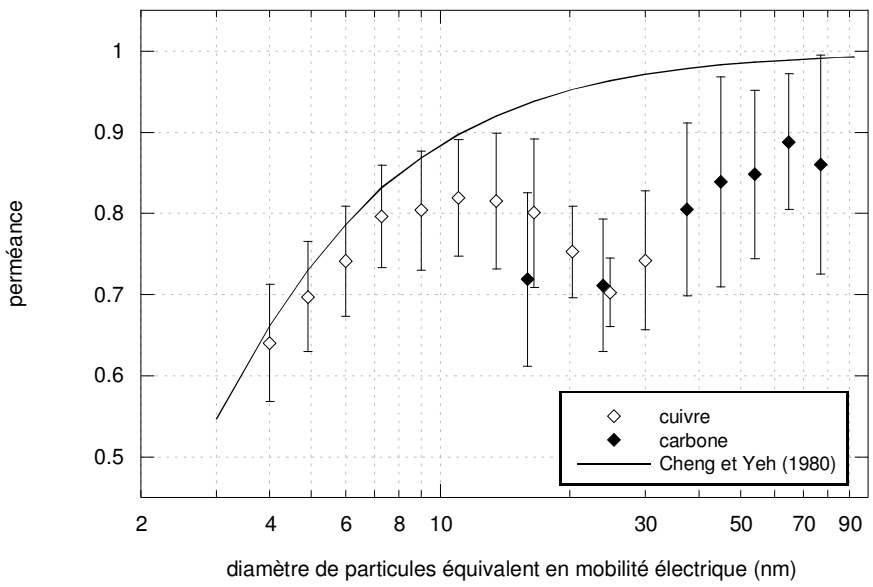


Figure III-6 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers de la grille fluortex 150, à 5 cm.s^{-1}

Si un accord correct peut être relevé en-dessous de 11 nm entre théorie classique et expérience, les perméances mesurées pour de plus grosses particules sont en revanche fortement inférieures aux valeurs prédites par le modèle de Cheng et Yeh (1980). La grille fluortex 150 affiche en outre un étonnant maximum local aux alentours de 10 nm, et un minimum local entre 20 et 40 nm. Au-dessus de 10 nm, P_{exp} diminue lorsque le diamètre de particules augmente, puis remonte de nouveau progressivement au-delà de 25 nm. L'une des conséquences directes de ce comportement singulier est la position respective des deux grilles fluortex 150 et nylon 75 l'une par rapport à l'autre : alors que la grille nylon 75 est la plus efficace en-dessous de 11 nm, elle devient plus perméante que la grille fluortex 150 au-dessus.

Cette situation n'est pas due à la nature chimique des aérosols, puisque dans la zone de diamètres où les deux spectres se recouvrent, les grilles affichent la même perméance (à 16 et 25 nm notamment), que les particules soient de cuivre ou de carbone. Cela ne justifierait de toute façon pas la baisse de perméance observée au-dessus de 10 nm pour les seules particules de cuivre. Elle peut en fait s'expliquer par la présence de particules chargées au sein de l'aérosol-test. En effet, comme nous l'avons souligné au chapitre II, l'aérosol en sortie de source ^{85}Kr est globalement neutre, mais une partie des particules est néanmoins porteuse de charges (figure II-4). Les charges (+) et (−) étant sensiblement réparties en proportions égales, on aboutit à une neutralité électrique globale (équilibre de Boltzmann), mais les aérosols envoyés sur le filtre sont cependant un « mélange » de particules positives, négatives et non-chargées (on notera également 0-chargées), dont les proportions respectives g(N) dépendent du diamètre d_p [équations (II-2) et (II-3)]. Dès lors, en supposant que la collecte de chaque « type » de particules est indépendante l'une de l'autre, nous pouvons écrire :

$$P = \sum_{N=-2}^{2} \left[g(N) \times P(N) \right] \qquad \text{(III-2)}$$

Si la perméance P(0) des particules non-chargées suit effectivement la relation de Cheng et Yeh (1980), et en considérant en première approximation qu'en raison de forces

électrostatiques importantes (voir chapitre I), l'efficacité de filtration des particules chargées est totale [P(N) = 0 pour N ≠ 0], alors :

$$P = g(0) \times P(0) = g(0) \times \exp\left(-2{,}7\,Pe^{-2/3}\frac{4\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi\, d_f}\right) \qquad \text{(III-3)}$$

La figure III-7 compare l'expression (III-3) aux points expérimentaux de la grille fluortex 150 (figure III-6), ainsi qu'à ceux obtenus en testant l'efficacité de plusieurs grilles en série :

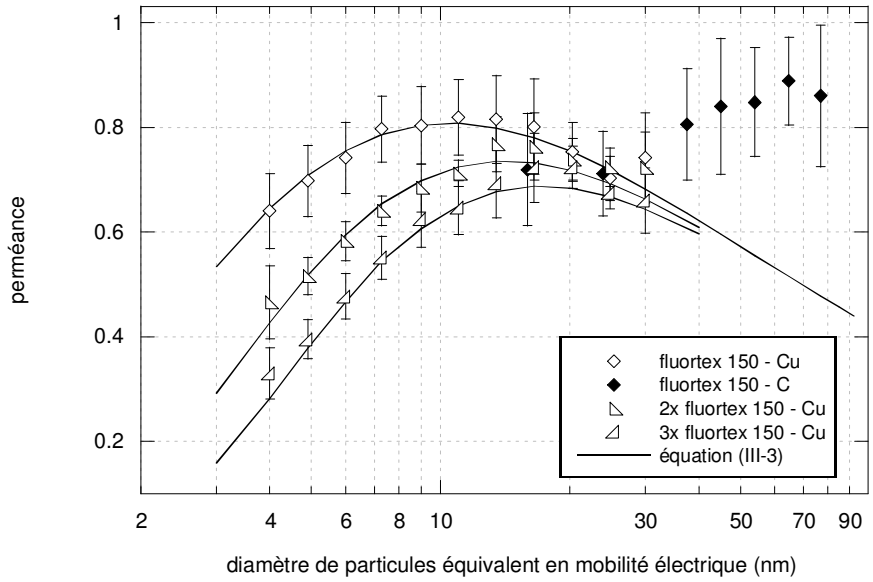


Figure III-7 : Comparaison de l'équation (III-3) aux perméances mesurées pour la grille fluortex 150 (jusqu'à 3 en série) dans le cas d'aérosols globalement neutres, à 5 cm.s^{-1}

Entre 4 et 30 nm, l'équation (III-3) représente assez bien les résultats obtenus, y compris lorsque 2 ou 3 grilles fluortex sont placées en série. Les mesures réalisées sur ces dernières ont permis de confirmer l'existence d'un maximum local de perméance. Celui-ci évolue par ailleurs en fonction du nombre de grilles en série, et passe de 11 nm pour une seule grille fluortex à 16 nm environ pour trois grilles. Au-dessus de 30 nm, l'expression (III-3) diverge totalement des valeurs expérimentales. Ceci est vraisemblablement dû au fait que l'hypothèse de perméance nulle pour les particules chargées risque d'être d'autant moins valable que l'aérosol est plus gros, car plus le diamètre de particules sera élevé, moins celles-ci seront mobiles électriquement [équation (II-4)]. Ce premier modèle (III-3) reste donc à améliorer, ce qui sera fait après étude de la filtration de nanoaérosols chargés. Avant cela, remarquons qu'aucun des modèles développés jusqu'à présent dans la littérature n'aurait permis de prédire la situation observée plus haut (extrema locaux de perméance entre 10 et 40 nm).

3. Filtration d'aérosols chargés

3.1. Cas des grilles inox

La figure III-8 présente les perméances à 5 cm.s^{-1} d'aérosols de cuivre monochargés positivement au travers des cinq grilles inox du tableau III-1.

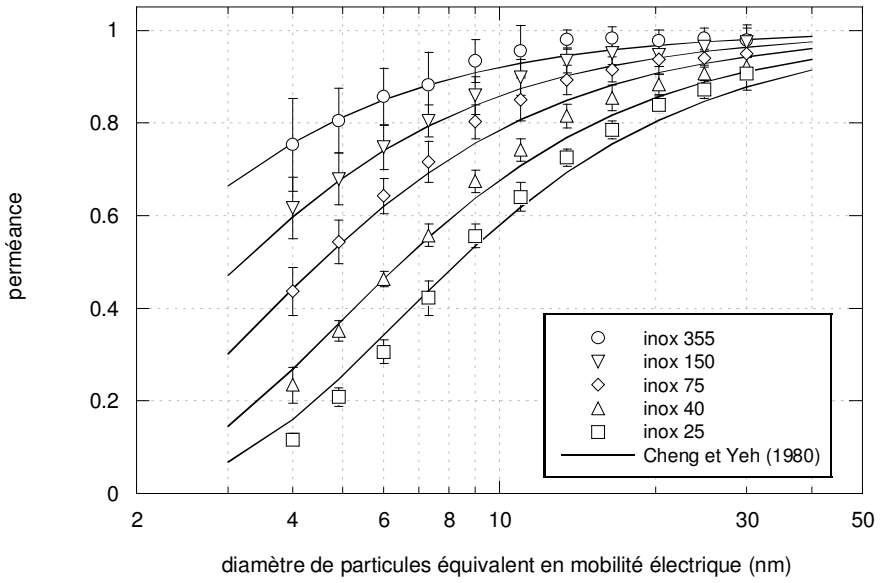


Figure III-8 : Perméance des 5 grilles inox vis-à-vis de particules de cuivre chargées positivement, à 5 cm.s^{-1}

Aucun rebond thermique des particules n'est observé. Là encore, le modèle de Cheng et Yeh (1980) permet une bonne estimation de l'efficacité des médias, malgré la charge portée par les particules. Ceci reste vrai pour des vitesses de filtration plus importantes, à 10 et 15 cm.s^{-1}. (figures III-9 et III-10 respectivement)

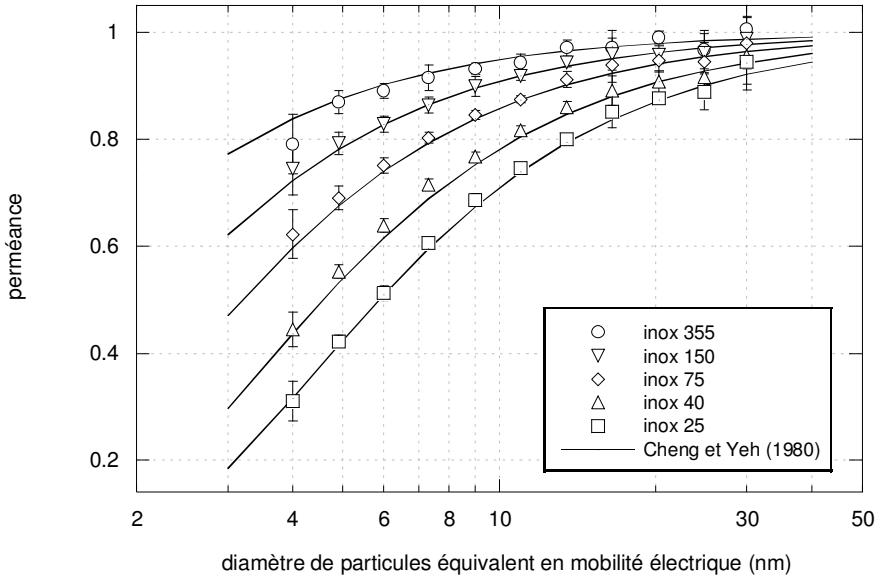


Figure III-9 : Perméance des 5 grilles inox vis-à-vis de particules de cuivre chargées positivement, à 10 cm.s^{-1}

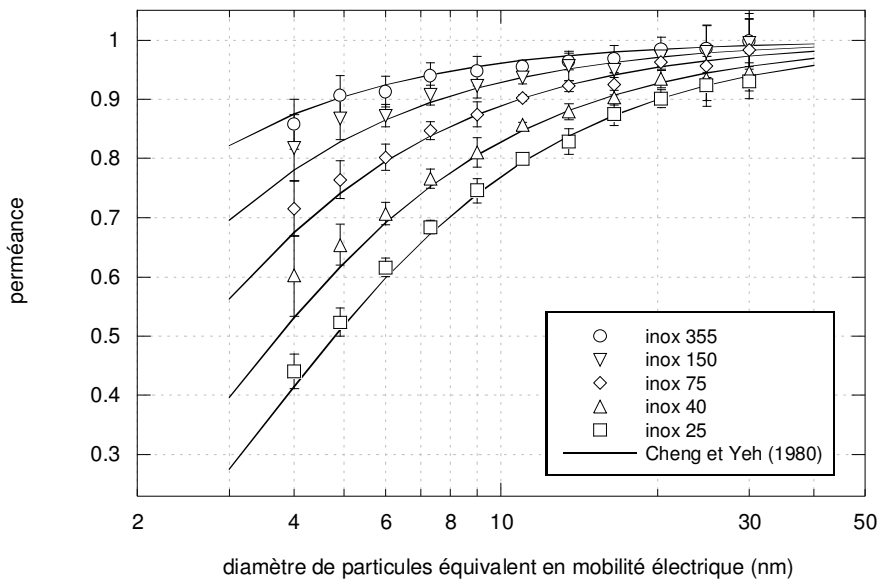


Figure III-10 : Perméance des 5 grilles inox vis-à-vis de particules de cuivre chargées positivement, à 15 cm.s^{-1}

Le signe de la charge portée par les particules ne semble pas non plus un facteur déterminant (figure III-11) :

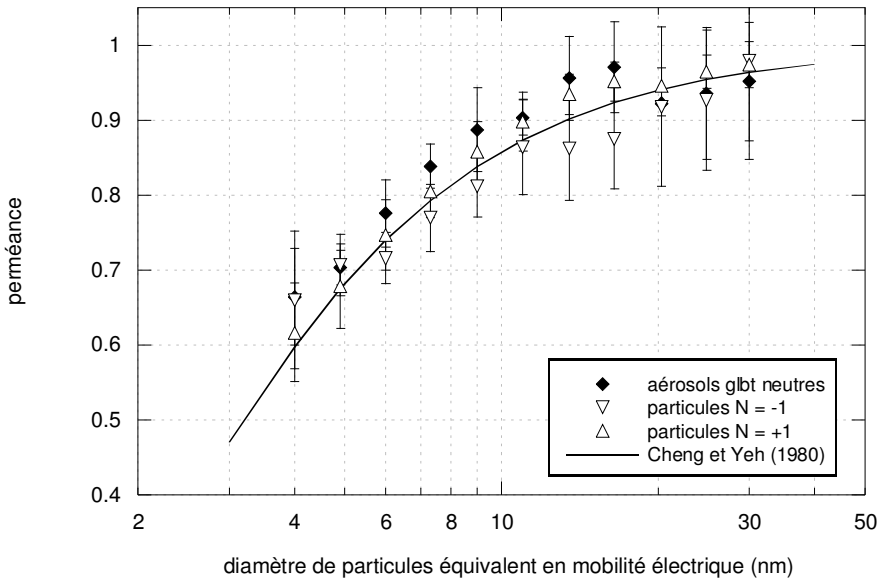


Figure III-11 : Perméance de la grille inox 150 à 5 cm.s^{-1} selon l'état de charge des particules de cuivre

Ainsi, dans le domaine ultrafin, et dans le cas des grilles inox, le modèle de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980) semble pouvoir être employé quels que soient la nature chimique ou l'état de charge des particules. La prise en compte de forces supplémentaires, comme la force image à partir de l'expression d'Alonso et al. (2007) par exemple [équations (I-40) ou (I-41)], paraît en effet inutile compte tenu du très bon accord déjà obtenu en ne considérant que la diffusion brownienne.

3.2. Cas des grilles synthétiques

Les figures III-12 et III-13 présentent les perméances mesurées pour des particules de cuivre inférieures à 30 nm, monochargées positivement ou négativement, au travers des grilles nylon 75 et fluortex 150 respectivement. Les résultats obtenus pour des aérosols à l'équilibre de Boltzmann, présentés figures III-5 et III-6, sont également tracés à titre de comparaison. En-dessous de 6 nm pour la grille nylon 75 et 13 nm pour la grille fluortex 150, la perméance des médias est inférieure à P_{lim} (figure II-26) et ne peut donc pas être mesurée.

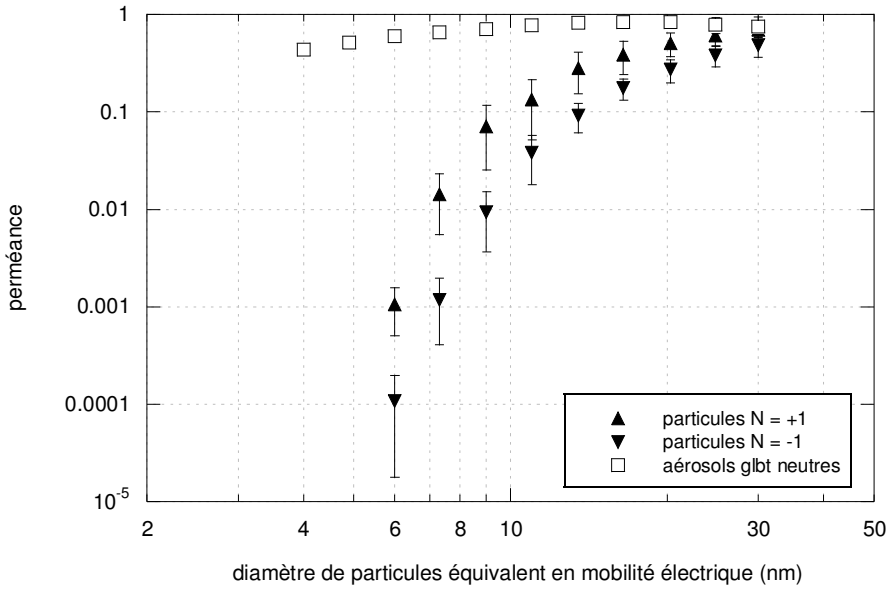


Figure III-12 : Influence de l'état de charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers de la grille nylon 75, à 5 cm.s^{-1}

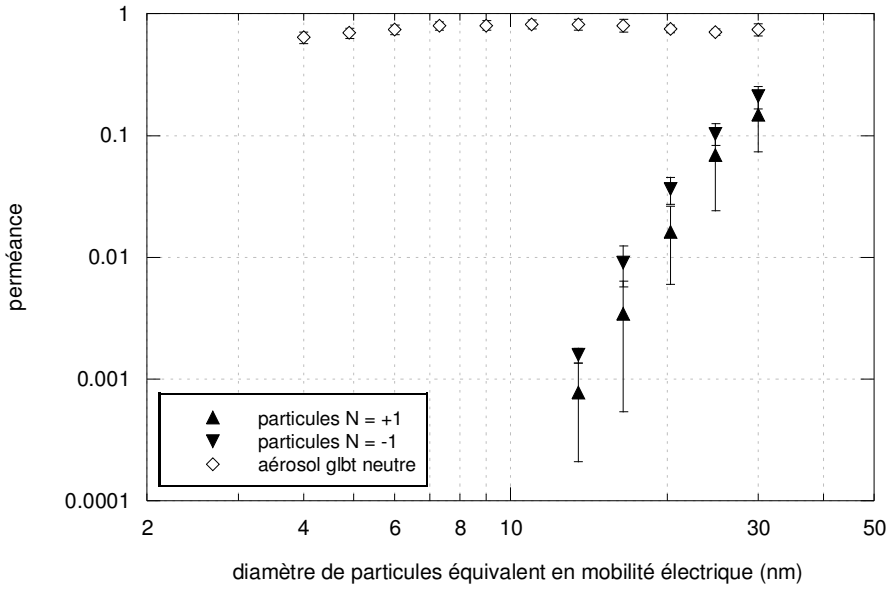


Figure III-13 : Influence de l'état de charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers de la grille fluortex 150, à 5 cm.s^{-1}

Il est à noter que contrairement à ce qu'ont rapporté Alonso et Alguacil (1999), nous n'avons pas observé, en réalisant plusieurs spectres consécutifs, d'évolution significative de la perméance au cours du temps, même en laissant les grilles se « charger » au contact des particules durant plusieurs heures. Difficilement explicables, ces divergences proviennent peut-être de la différence de matériaux des grilles utilisées (PET pour Alonso et Alguacil, polyamide et ETFE dans le cas de cette étude).

Il apparaît clairement figures III-12 et III-13 que les deux grilles sont beaucoup plus efficaces dans le cas d'aérosols chargés. De plus, la différence de perméance entre particules chargées et aérosols globalement neutres croît de manière spectaculaire lorsque le diamètre de particules diminue. Une particule porteuse de charge étant d'autant plus mobile, sous l'effet d'un champ électrique donné, que son diamètre est plus faible (mobilité électrique Z_p plus grande), ce résultat laisse à penser qu'interviennent ici des forces coulombiennes. Autrement dit, les grilles seraient chargées, qui plus est bipolairement. Au vu de la nature chimique des fibres, cette hypothèse est tout à fait plausible. Concernant la grille fluortex 150, en éthylène tétrafluoroéthylène (ETFE), les liaisons C–F tendent à être polarisées, l'atome de fluor étant plus électronégatif que celui de carbone (figure III-14). Quant au polyamide de la grille nylon 75, le doublet d'électrons non liant de l'atome d'azote peut engendrer des formes de résonance de la molécule, qui laisse apparaître une charge (+) sur l'atome d'azote et une charge (–) sur l'atome d'oxygène (figure III-15) [March (1992), Clayden et al. (2002)].

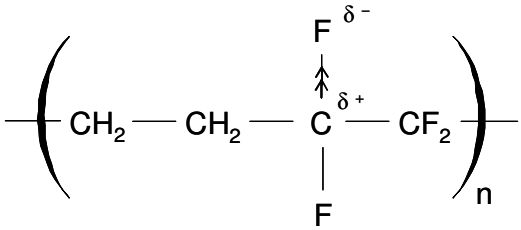


Figure III-14 : Structure d'une molécule d'ETFE

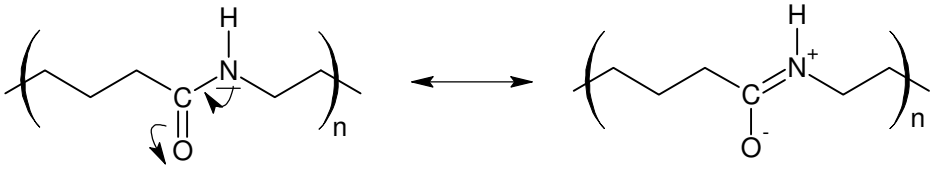


Figure III-15 : Formes de résonance d'une fonction polyamide

La différence de perméance entre particules positives et négatives, notamment dans le cas de la grille nylon 75, est plus délicate à expliquer. Peut-être est-elle due à un problème de disponibilité des charges des fibres ? Les sites $N^{(+)}$ seraient ainsi plus « accessibles » que les sites $O^{(-)}$? Ou alors, le média présente des densités en charges positives et négatives différentes, comme cela peut parfois être observé dans le cas des filtres électrets [Lowkis et Motyl (2001)]. Comme énoncé au chapitre I, le principal problème posé par la modélisation des résultats de perméance obtenus pour des particules chargées est justement la non-maîtrise et la non-connaissance de ces densités de charges portées par les fibres. Faute de pouvoir vérifier les hypothèses émises ci-avant, nous considérerons dans la suite de ce rapport des densités λ moyennes, indépendante du signe des charges.

A défaut de pouvoir modéliser les perméances mesurées, ne connaissant pas λ, il est possible de raisonner en sens inverse et d'estimer cette densité de charges des médias à partir des valeurs expérimentales de P trouvées. Dans le cas présent (grille nylon 75 et fluortex 150), nous supposons que la capture des particules chargées est uniquement due à des forces coulombiennes. Cette hypothèse peut être validée par la représentation de $\eta_{exp,|N|=1}$ [équation (III-1)] en fonction de l'efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne η_d calculée théoriquement à partir de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980) (figure III-16).

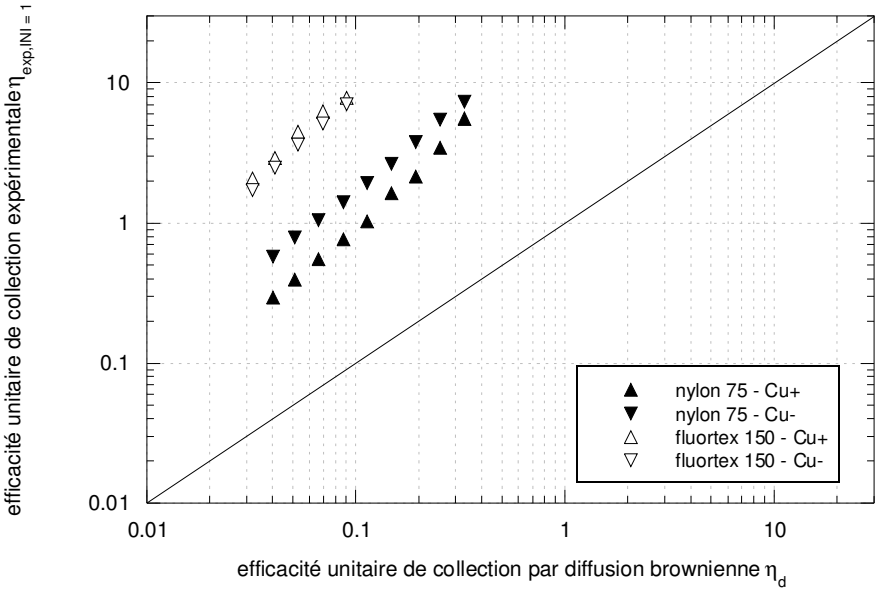


Figure III-16 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de η_d théorique

$\eta_{exp,|N|=1}$ est largement supérieure à η_d dans tous les cas (d'environ un facteur 20 pour la grille nylon 75, et 80 pour la fluortex 150). Le mécanisme de diffusion brownienne peut donc bien être négligée devant les forces coulombiennes et :

$$\eta_{exp,|N|=1} = \eta_{qq,|N|=1} \qquad \text{(III-4)}$$

Dès lors, à partir de l'expression de Kraemer et Johnstone (1955) [tableau I-7], il vient :

$$\eta_{exp,|N|=1} = \pi N_{qq} \qquad \text{(III-5)}$$

$$\eta_{exp,|N|=1} = \lambda \frac{Z_p}{U \varepsilon_0 d_f} \qquad \text{(III-6)}$$

λ peut donc être vu comme le coefficient directeur de la droite passant par l'origine représentant $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de Z_p / U ε_0 d_f (figure III-17) :

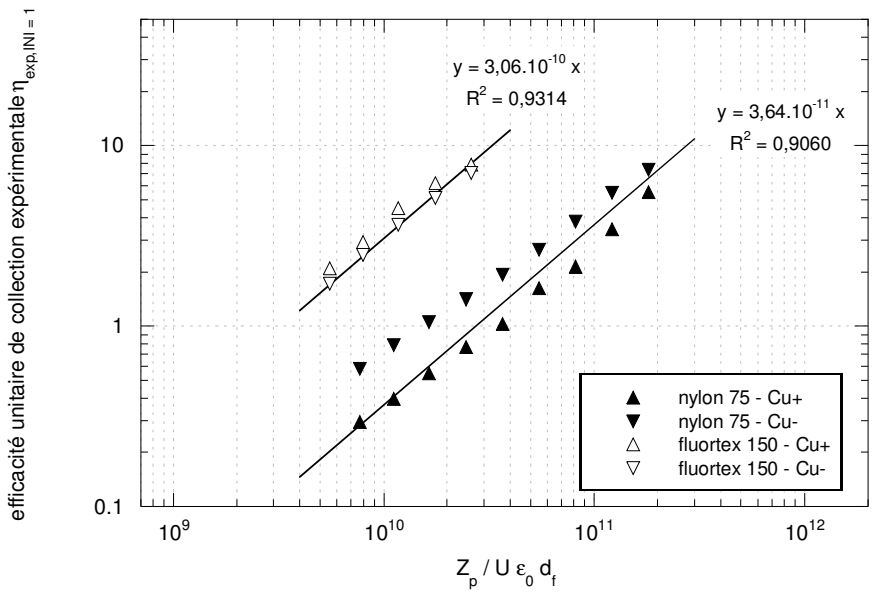


Figure III-17 : Détermination de la densité linéique de charge λ pour les grilles nylon 75 et fluortex 150

Ainsi, pour la grille nylon 75, $\lambda \approx 3{,}64 \times 10^{-11}$ C.m^{-1} et pour la grille fluortex 150, $\lambda \approx 3{,}06 \times 10^{-10}$ C.m^{-1}. La comparaison des densités de charges par unité de surface σ nous paraît plus judicieuse. Celles-ci peuvent être obtenues à partir de λ de la manière suivante :

$$\sigma = \frac{\lambda}{\pi\, d_f} \qquad \text{(III-7)}$$

Pour la grille nylon 75, $\sigma \approx 1{,}54 \times 10^{-7}$ C.m^{-2} et pour la fluortex 150, $\sigma \approx 9{,}28 \times 10^{-7}$ C.m^{-2}. L'ordre de grandeur trouvé est cohérent avec celui donné par Lowkis et Motyl (2001), pour des fibres de polypropylène (σ compris entre 10^{-6} et $2{,}5 \times 10^{-5}$ C.m^{-2}).

La grille fluortex 150 est donc beaucoup plus chargée que la grille nylon 75. Cela explique pourquoi, malgré une compacité moins importante et un diamètre de fibres plus grand (tableau III-1), autrement dit une structure beaucoup plus « ouverte », la grille fluortex 150 se révèle plus efficace que la grille nylon vis-à-vis de nanoparticules chargées (figure III-18). Les figures III-18 et III-19 reprennent les points expérimentaux des figures III-12 et III-13, ainsi que les perméances mesurées pour des aérosols de carbone chargés supérieurs à 15 nm. Sont également représentées sur la figure III-19 les valeurs de P obtenues pour des particules de cuivre au travers de 2 ou 3 grilles fluortex 150 en série. Les courbes théoriques tracées en trait continu correspondent à :

$$P = \exp\left(-4\frac{\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi\, d_f}\eta_{qq}\right) \qquad \text{(III-8)}$$

η_{qq} étant calculée à partir des valeurs de λ déterminées plus haut.

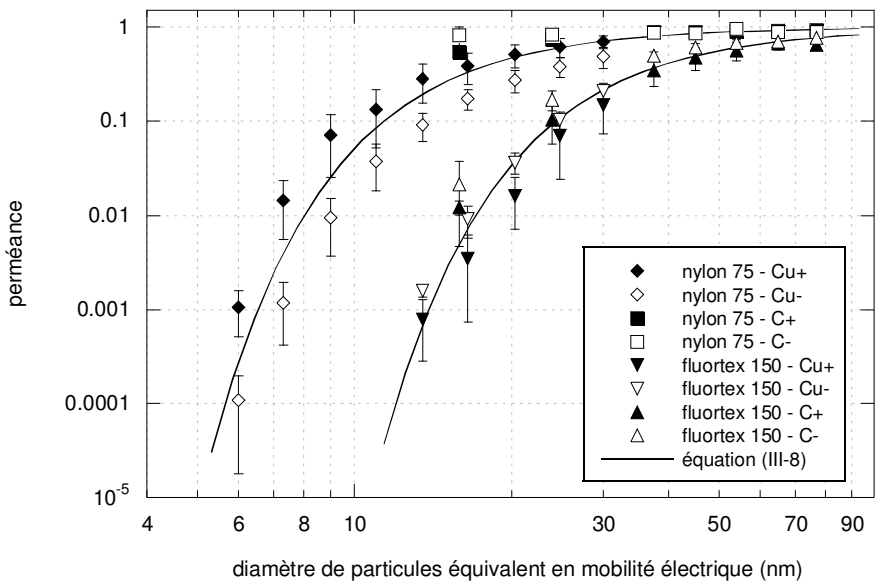


Figure III-18 : Comparaison de l'équation (III-8) aux perméances mesurées pour les grilles nylon 75 et fluortex 150 dans le cas d'aérosols de cuivre ou de carbone chargés, à 5 cm.s^{-1}

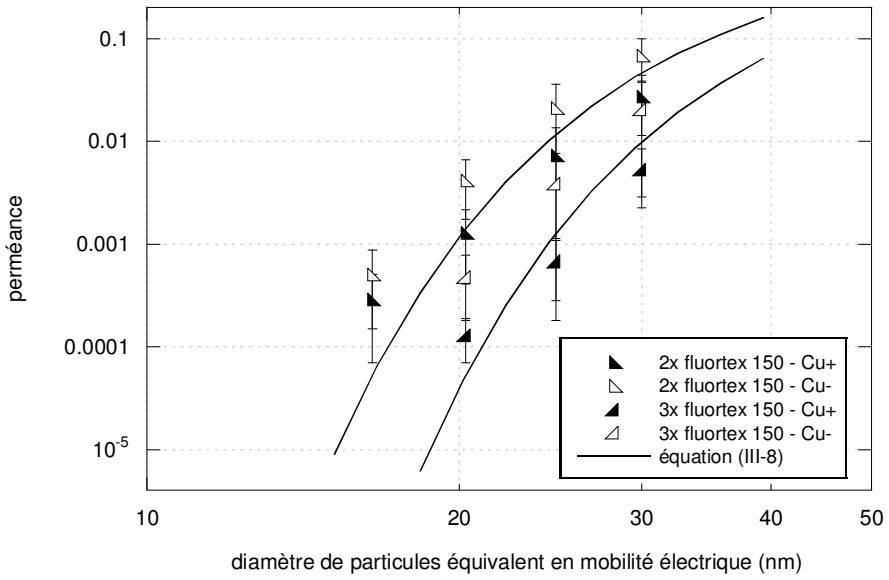


Figure III-19 : Comparaison de l'équation (III-8) aux perméances mesurées pour 2 ou 3 grilles fluortex 150 en série vis-à-vis d'aérosols de cuivre chargés, positivement ou négativement, à 5 cm.s^{-1}

En toute logique, l'équation (III-8) représente bien les perméances mesurées au travers des grilles nylon 75 et fluortex 150 pour des particules de cuivre entre 3 et 40 nm, puisque les densités de charge λ ont été obtenues à partir de ces mêmes points. Il est en revanche intéressant de noter que l'expression (III-8) permet aussi de modéliser la perméance au travers de plusieurs grilles fluortex en série, ainsi que la perméance des particules de carbone.

4. Retour sur la filtration d'aérosols globalement neutres

Comme on a pu le voir sur la figure III-18, la perméance de particules chargées augmente lorsque leur diamètre augmente, et se rapproche de l'unité pour les plus grosses d'entre elles. L'hypothèse de perméance nulle émise pour passer de l'expression (III-2) à (III-3) s'avère donc bien, comme supposé plus haut, de moins en moins valable au fur et à mesure que le diamètre de particules augmente. L'efficacité de collecte vis-à-vis de particules chargées étant désormais connue, et prédictible à partir de l'équation (III-8), la perméance d'un aérosol globalement neutre (à l'équilibre de Boltzmann) au travers des grilles nylon 75 et fluortex 150 peut à présent être calculé à partir de l'équation (III-2). On supposera pour cela que la perméance des particules doublement chargées [qui représentent de toute façon moins de 10 % de l'ensemble des particules de l'aérosol, quel que soit d_p (figure II-4)] est elle aussi estimable à partir de l'expression (III-8), via le calcul du η_{qq} correspondant. Ainsi :

$$P = g(0) \times P(0) + [g(1) + g(-1)] \times P(|N| = 1) + [g(2) + g(-2)] \times P(|N| = 2) \qquad \text{(III-9)}$$

$$P = g(0) \times \exp\left(-2{,}7\,Pe^{-2/3}\frac{4\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi d_f}\right) + [g(1) + g(-1)] \times \exp\left(-4\frac{\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi d_f}\eta_{qq,|N|=1}\right)$$
$$+ [g(2) + g(-2)] \times \exp\left(-4\frac{\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi d_f}\eta_{qq,|N|=2}\right) \qquad \text{(III-10)}$$

Compte tenu de l'importance de $\eta_{qq,|N|=2}$ (pour un même diamètre de particules, une fibre captera deux fois plus de particules bichargées que monochargées, pour lesquelles l'efficacité de collecte est déjà importante), et de la faible valeur de $[g(2) + g(-2)]$ (terme inférieur à 0,1), le troisième membre de la somme (III-10) pourrait être assimilé à 0 sans engendrer beaucoup d'erreurs.

Les fibres étant chargées (selon une densité λ), l'éventualité de forces de polarisation intervenant dans la capture des particules 0-chargées de l'aérosol ne doit pas être exclue. Nous avons donc calculé les valeurs théoriques de η_{q0} (tableau I-7). Afin de majorer ce terme, l'expression de Kraemer et Johnstone (1955) a été utilisée, et le terme $(\varepsilon_p - 1)/(\varepsilon_p + 2)$ dans N_{q0} pris égal à 1. Malgré cela, η_{q0} reste très inférieur à η_d, quels que soient la grille ou le diamètre de particules considéré (facteur 60 entre les 2 termes au minimum). La considération de la seule diffusion brownienne pour la fraction non-chargée g(0) des aérosols globalement neutres paraît donc correcte.

Les figures III-20 et III-21 reprennent les points expérimentaux des figures III-5 et III-6, respectivement pour la grille nylon 75 et la grille fluortex 150, et les comparent à (III-10).

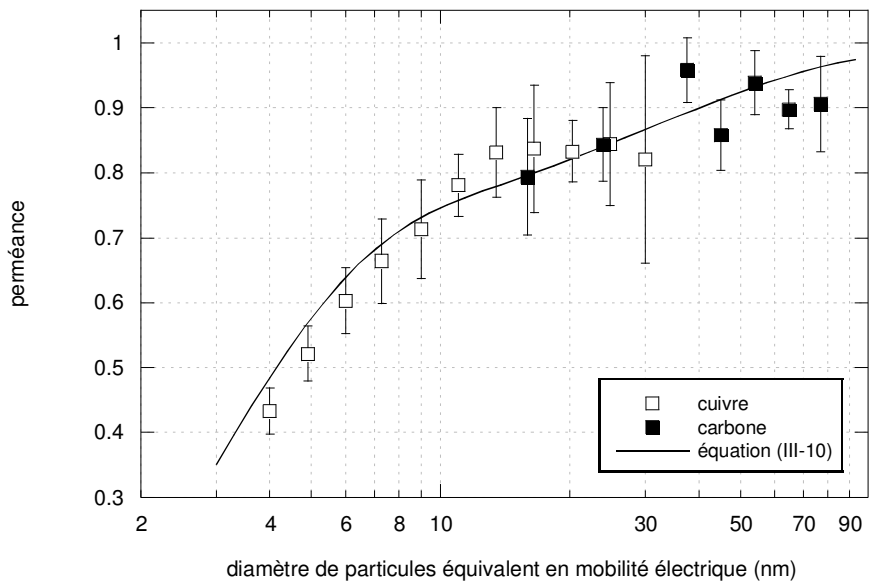


Figure III-20 : Comparaison de l'équation (III-10) aux perméances mesurées pour la grille nylon 75 dans le cas d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres, à 5 cm.s^{-1}

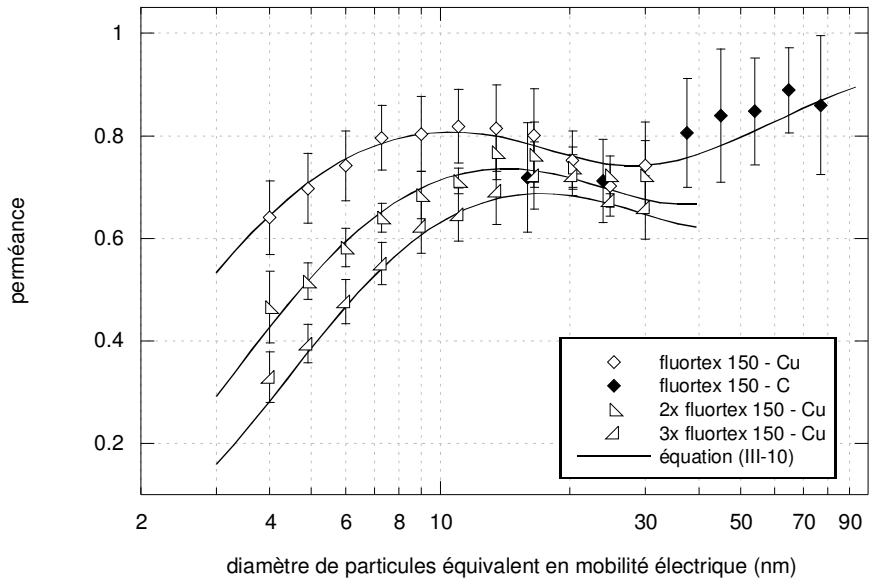


Figure III-21 : Comparaison de l'équation (III-10) aux perméances mesurées pour la grille fluortex 150 (jusqu'à 3 en série) dans le cas d'aérosols globalement neutres, à 5 cm.s^{-1}

Cette fois-ci, le modèle (III-10) représente bien l'ensemble des valeurs de perméance mesurées, y compris le minimum local observé aux alentours de 25 nm pour la grille fluortex.

Jusqu'à présent, nous avons supposé que la capture des particules 0-chargées pouvait être modélisée par l'expression de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980) (ce qui semble être une hypothèse juste compte tenu du bon accord entre (III-10) et les résultats modélisés). Il ne nous est pas possible, dans la pratique, de « générer » ces particules non-chargées seules. Aussi, une autre approche que celle suivie ci-avant aurait pu être de redéterminer des valeurs

de perméances P(0) à partir de l'expression (III-8) et de P_{exp} (perméances mesurées pour des aérosols globalement neutres), $P(1)_{exp}$ et $P(-1)_{exp}$ (perméances obtenues pour des particules monochargées positives et négatives respectivement). En supposant que l'efficacité de capture vis-à-vis des particules doublement chargées est totale (car il nous est là aussi impossible de la déterminer expérimentalement ; en tout état de cause, elle serait certainement très faible…), il vient, à partir de l'expression (III-2) :

$$P(0)_{exp} = \frac{P_{exp} - [g(1) \times P(1)_{exp} + g(-1) \times P(-1)_{exp}]}{g(0)} \qquad \text{(III-11)}$$

La figure III-22 montre les valeurs de P(0) « expérimentales » obtenues ainsi en-dessous de 30 nm, et les compare aux valeurs calculées à partir du modèle de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980). Lorsque $P(1)_{exp}$ ou $P(-1)_{exp}$ n'étaient pas connues [car en-dessous de P_{lim} ; figure (II-26)], pour des particules de 4 nm par exemple, celles-ci ont été considérées nulles.

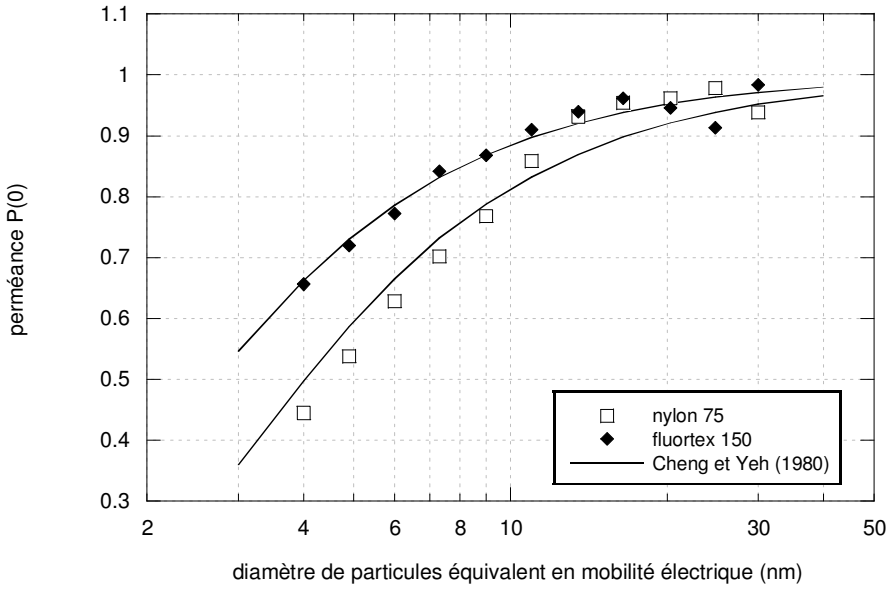


Figure III-22 : Comparaison du modèle de Cheng et Yeh (1980) aux valeurs de perméances $P(0)_{exp}$ calculées selon l'équation (III-11) pour des particules de cuivre entre 4 et 30 nm, à 5 cm.s^{-1}

La figure III-22 confirme que la collecte de particules 0-chargées, seules particules d'un aérosol globalement neutre à être captées uniquement par diffusion, peut effectivement être prédite de façon satisfaisante à partir de $\eta_d = 2{,}7\ Pe^{-2/3}$. L'accord moindre au-dessus de 10 nm vient du fait que l'incertitude sur $P(0)_{exp}$ est plus grande, en raison des trois termes P_{exp}, $P(1)_{exp}$ et $P(-1)_{exp}$ utilisés pour son calcul.

La même démarche pourrait être envisagée pour les grilles inox. Cependant, comme nous l'avons vu, le modèle $2{,}7\ Pe^{-2/3}$ est satisfaisant quels que soient la nature ou l'état de charge des aérosols ; il en découlerait logiquement que $P(0)_{exp}$ peut être estimée à partir de ce même modèle.

5. Synthèse

Le tableau III-2 récapitule l'ensemble des conclusions auxquelles nous avons abouties ci-avant, et redonne pour chaque cas le modèle d'efficacité unitaire η ou de perméance P qui semble le plus approprié.

Tableau III-2 : Expressions de η et P selon le cas rencontré

Type d'aérosol	Grille métallique	Grille synthétique
particules chargées		$\eta = \pi N_{qq}$ avec $N_{qq} = \dfrac{\lambda q Cu}{3 \pi^2 \mu U \varepsilon_0 d_p d_f}$
particules non-chargées	$\eta = 2{,}7\ Pe^{-2/3}$	$\eta = 2{,}7\ Pe^{-2/3}$
aérosol globalement neutre		$P = \sum_{N=-2}^{2} [g(N) \times P(N)]$

Dans le cas des grilles métalliques, le modèle de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980) est utilisable pour n'importe quelle nature d'aérosol. Pour les grilles synthétiques, des forces coulombiennes interviennent dans la capture des particules chargées, et abaissent la perméance globale des aérosols à l'équilibre de Boltzmann, pour lesquels il convient de tenir compte des mécanismes prenant place pour chaque fraction g(N) de particules.

Dans tous les cas, aucun rebond thermique n'est observé sur la plage de diamètres étudiés : plus l'aérosol est fin, plus il est efficacement collecté par les médias, ce qui rejoint, sur le plan expérimental, les observations faites par la majorité des auteurs répertoriés dans les tableaux III-5 et III-6.

6. Retour sur la théorie du rebond thermique

Plus les particules sont petites, plus elles sont diffusives, et donc, plus l'aérosol tend, en quelque sorte, à se « comporter » comme un gaz. Or, dans la plupart des cas, les molécules de gaz passent au travers des fibres d'un filtre sans être retenues. Ainsi, l'un des intérêts majeurs de la théorie du rebond thermique résidait dans le fait qu'elle permettait d'entrevoir un lien entre le domaine de la filtration et celui de l'adsorption des gaz, en raison de la non-rétention progressive des particules en-dessous d'un certain diamètre.

Compte tenu des résultats présentés ci-avant, aucun rebond thermique de particules ne semble avoir lieu entre 4 et 10 nm. Dès lors, comment expliquer ce manque de cohérence entre l'expérience et la théorie de Wang et Kasper ?

La première solution est de considérer tout simplement que le rebond thermique n'existe pas. L'autre possibilité, choisie ici, consiste à regarder de plus près les calculs de Wang et Kasper.

La polémique autour de l'efficacité de filtration des filtres à fibres en-dessous de 10 nm trouve essentiellement son origine dans la figure 4 de Wang et Kasper (1991), que nous avons reproduite figure I-9. Cette figure a été obtenue en utilisant l'approche JKR pour le calcul de V_{cr} [équation (I-28)]. Or, comme nous l'avons souligné au chapitre I, Wang et Kasper ont montré qu'il n'y avait guère de différences significatives entre les vitesses critiques données par cette théorie et celle de Bradley-Hamaker (figure I-7). Par conséquent, nous pouvons calculer une constante d'Hamaker équivalente $A_{éq}$ à partir des données utilisées pour construire la figure I-9. En égalisant (I-27) et (I-28) :

$$A_{éq} = \sqrt[3]{3^7 \pi^7 \left(K_s + K_p \right)^2 \sigma_{p,s}^5 z_0^3 d_p} \qquad \text{(III-12)}$$

Le diamètre à partir duquel le rebond thermique commence ($\varepsilon < 1$) se situe, sur la figure I-9, entre 10 et 20 nm, ce qui donne :

$$A_{éq} \approx 5 \times 10^{-21} \text{ J} \qquad \text{(III-13)}$$

Or, d'après Churaev (2000), l'ordre de grandeur normal des constantes d'Hamaker dans l'air se situe entre 10^{-21} à 10^{-19} J (tableau III-3).

Tableau III-3 : Ordre de grandeur de la constante d'Hamaker A pour différents systèmes, d'après Churaev (2000)

système fibre-particule considéré	constante d'Hamaker A (J), dans l'air
métal-métal	$4{,}0 \times 10^{-19}$
métal-quartz	$2{,}6 \times 10^{-19}$
quartz-quartz	$7{,}9 \times 10^{-20}$
polymère-polymère	$6{,}4 \times 10^{-20}$

Autrement dit, en prenant $K_p = 1{,}4 \times 10^{-12}$ m^2.N^{-1}, $K_s = 9 \times 10^{-11}$ m^2.N^{-1} et $\sigma_{p,s} = 0{,}005$ J.m^{-2}, Wang et Kasper ont sous-estimé l'énergie d'adhésion du système fibre-particule. Par conséquent, le diamètre de particule en-dessous duquel un rebond thermique est susceptible de se produire a été sur-évalué, aboutissant aux incohérences avec l'expérience généralement pointées par les différents auteurs de la littérature. Selon nous, 0,005 J.m^{-2} (ou même 0,01 J.m^{-2} comme mentionné dans l'article de 1991) est une valeur trop faible pour représenter l'énergie spécifique d'adhésion $\sigma_{p,s}$. A partir de l'équation (III-12) :

$$\sigma_{p,s,éq} = \sqrt[5]{\frac{A^3}{3^7 \pi^7 \left(K_s + K_p \right)^2 z_0^3 d_p}} \qquad \text{(III-14)}$$

En prenant une valeur moyenne de A (2×10^{-19} J) pour représenter le système acier/polystyrène considéré :

$$\sigma_{p,s,éq} \approx 0{,}04 \text{ J.m}^{-2} \qquad \text{(III-15)}$$

Même en cherchant à minorer $\sigma_{p,s}$, en prenant la plus petite valeur de A donné par le tableau III-3 (c'est-à-dire $6{,}4 \times 10^{-20}$ J), des valeurs maximales pour K_s et K_p ($8{,}86 \times 10^{-11}$ $m^2.N^{-1}$ selon le tableau I-4) et un diamètre de particules d_p de 100 nm (ce qui est bien au-dessus de la zone de transition éventuelle diffusion/rebond thermique) :

$$\sigma_{p,s,min} \approx 0{,}011 \text{ J.m}^{-2} \qquad \text{(III-16)}$$

Nous proposons donc de reprendre l'approche de Wang et Kasper en utilisant l'expression de Bradley-Hamaker pour le calcul de V_{cr}. Ce choix nous apparaît d'autant plus justifié que sur la plage de diamètre d_p considérée, le paramètre de Tabor sera probablement plus petit que 0,1. Ce paramètre Ta, comparant l'intensité de la déformation élastique d'un système aux forces surfaciques de ce même système, permet selon sa valeur de choisir parmi les différents modèles proposés pour l'évaluation de l'énergie d'adhésion. Tabor (1977) a en effet montré que les modèles JKR et de Bradley-Hamaker, initialement perçus comme « concurrents », s'appliquaient en fait aux deux extrémités du spectre du paramètre Ta [expression (III-17)]. D'après Johnson (1997), pour de faibles valeurs de Ta (typiquement, Ta < 0,1), la déformation élastique peut être négligée (hypothèse qu'ont d'ailleurs émise Wang et Kasper pour leurs calculs) ; l'expression de Bradley-Hamaker fournit alors une bonne approximation des forces d'adhésion. Pour Ta supérieur à 10 en revanche, le modèle JKR est plus approprié. Pour les valeurs intermédiaires, une analyse numérique beaucoup plus complexe est nécessaire [Muller et al. (1980), Maugis (1992), Greenwood (1997), Schwarz (2003), Kadin et al. (2008)].

$$\text{Ta} = \left(\frac{R^* \, \Delta\gamma^2}{z_0^3 \, Y^{*2}} \right)^{1/3} \qquad \text{(III-17)}$$

où $\Delta\gamma$ est le travail d'adhésion, donné par l'équation de Dupré [voir Israelachvili (1991)]. Sa valeur peut être estimée en le prenant égal à 2 fois l'énergie d'adhésion $\sigma_{p,s}$, dont l'ordre de grandeur, comme nous l'avons vu plus haut [équation (III-15)], est de quelques 10^{-2} $J.m^{-2}$. R* et Y* sont respectivement les rayon de contact et module élastique équivalents, définis comme :

$$R^* = \left(\frac{2}{d_p} + \frac{2}{d_f} \right)^{-1} \qquad \text{(III-18)}$$

et

$$Y^* = \frac{1}{\pi \left(K_s + K_p \right)} \qquad \text{(III-19)}$$

De plus, pour passer de (I-25) à (I-28), Wang et Kasper ont considéré :

$$E_{ad} = \frac{-A \, d_p}{12 \, z_0} \qquad \text{(III-20)}$$

Or, pour une sphère en contact avec un plan (compte tenu du rapport de diamètres entre la particule et la fibre, cette dernière peut être vue comme une surface plane), l'expression (III-20) est une approximation de la formule plus complète [Parsegian (2006)] :

$$E_{ad} = \frac{-A}{6}\left[\frac{d_p}{2\,z_0} + \frac{d_p}{2\left(d_p + z_0\right)} + \ln\left(\frac{z_0}{d_p + z_0}\right)\right] \qquad \text{(III-21)}$$

L'équation (III-20) est obtenu à partir de (III-21) en négligeant z_0 devant d_p (pour rappel, z_0 est généralement pris égal à 0,4 nm). Or, dans le domaine nanométrique, z_0 et d_p vont être du même ordre de grandeur : cette approximation n'est donc plus valable. Pour s'en rendre compte, la figure III-23 représente E_{ad} calculée selon les deux expressions (III-20) et (III-21), en fonction de d_p et pour une constante d'Hamaker A donnée. Le rapport entre les deux valeurs obtenues est également tracé, et lisible sur l'axe des ordonnées secondaire.

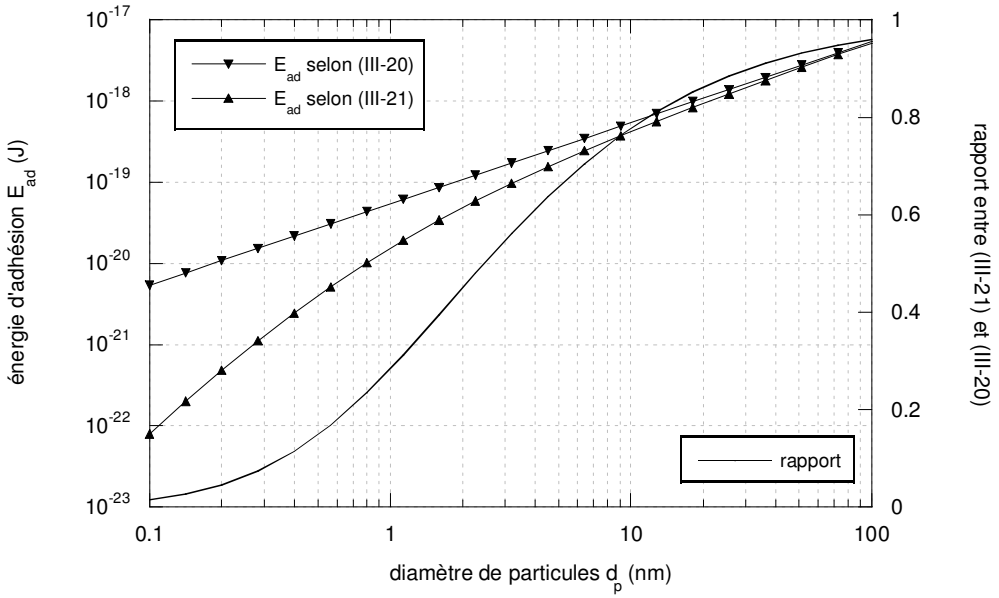


Figure III-23 : Comparaison des valeurs de E_{ad} calculées à partir de (III-20) et (III-21) – A = 2,6 × 10^{-19} J

Il apparaît clairement qu'en-dessous de 20 nm, l'équation (III-20) est de moins en moins valable au fur et à mesure que d_p diminue. En outre, les valeurs données par (III-21) sont plus faibles. Autrement dit, l'énergie d'adhésion E_{ad} est sur-estimée lorsque z_0 est négligé devant d_p. Cette surestimation ne suffit toutefois pas à compenser la sous-estimation engendrée par Wang et Kasper en considérant un système dont $A_{éq} \approx 5 \times 10^{-21}$ J [équation (III-13)]. Pour illustrer ce dernier point, la figure III-24 présente l'évolution du diamètre critique $d_{p,X}$, diamètre en-dessous duquel une majorité de particules est susceptible de rebondir, en fonction de A. D'un point de vue mathématique, $d_{p,X}$ correspond au diamètre pour lequel V_{im} et V_{cr} sont égales, c'est-à-dire R = 1 (cf. chapitre I). A partir de (III-20), il vient :

$$d_{p,X} = \frac{48\,kT}{\pi A} z_0 \qquad \text{(III-22)}$$

tandis que $d_{p,X}$ est solution de l'équation (III-23) lorsque E_{ad} est estimée à partir de (III-21):

$$\left[\frac{d_{p,X}}{2\,z_0}+\frac{d_{p,X}}{2\left(d_{p,X}+z_0\right)}+\ln\left(\frac{z_0}{d_{p,X}+z_0}\right)\right]=\frac{24\,kT}{\pi A} \qquad \text{(III-23)}$$

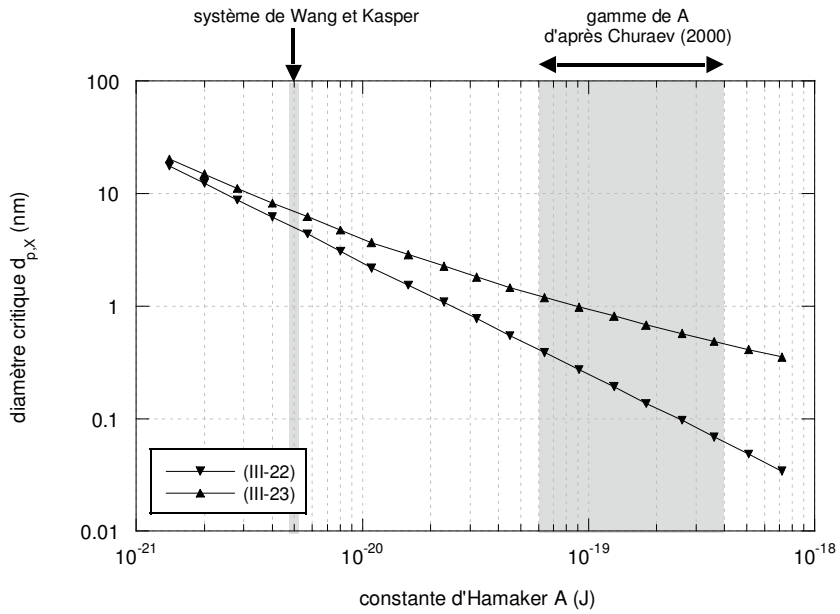


Figure III-24 : Diamètre critique $d_{p,X}$ en fonction de A

La figure III-24 confirme que si l'expression (III-22) donne sensiblement le même résultat que l'équation (III-23) pour $d_{p,X}$ lorsque $A \approx 5 \times 10^{-21}$ J, les 10 nm avancés par Wang et Kasper comme valeur limite en-dessous de laquelle le rebond thermique des particules intervient sont en revanche surestimés de près d'une puissance de 10 comparé à des systèmes plus « réalistes ». Pour des particules métalliques interagissant avec des fibres en quartz par exemple, un éventuel rebond thermique des particules ne se fera ressentir, selon nos calculs, qu'en-dessous de 1 nm.

Selon le tableau III-3, le système polymère-air-polymère est l'un des moins « adhésifs » qui soit, avec une constante d'Hamaker A de l'ordre de 6×10^{-20} J. Nous retraçons donc la figure 4 de Wang et Kasper (figure I-9) pour des particules de polymères collectées par des fibres également polymériques, conditions pour lesquelles le rebond thermique aura a priori lieu « au plus tôt », c'est-à-dire à partir d'un diamètre de particules d_p le plus grand possible (conformément à l'article de 1991, seuls diffusion et rebond thermique sont considérés ; il n'est pas tenu compte des effets électrostatiques participant à la collecte des particules, voire à l'adhésion de ces dernières à la fibre…). Les courbes initiales de Wang et Kasper ont été laissées figure III-25 pour faciliter la comparaison avec nos courbes. E_{ad}, et donc V_{cr} et ε, sont calculées à partir de l'équation (III-21).

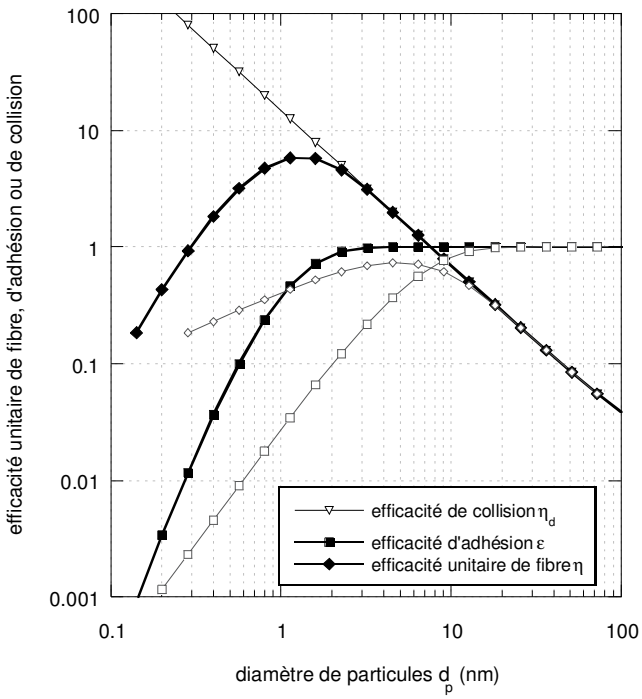


Figure III-25 : Rebond thermique pour des conditions opératoires les plus favorables possibles

Notons tout d'abord que si la décroissance de ε intervient à un diamètre de particules plus petit que d'après les calculs originaux de 1991, elle est ensuite plus rapide lorsque d_p diminue, en raison de l'utilisation de (III-21) pour le calcul de E_{ad}. Le lien entre filtration des aérosols et adsorption des gaz à partir de l'approche de Wang et Kasper demeure donc possible, et ce malgré les corrections apportées.

Il apparaît ensuite que même pour un système choisi spécifiquement pour ses forces d'adhésion très faibles, afin d'obtenir un rebond thermique pour le plus grand diamètre de particules possible, l'efficacité d'adhésion ε reste égale à 1 jusque 3 nm. Dès lors, s'il existe, et tel que l'ont développé ses auteurs (hormis les différences de formules de calcul, l'ensemble de leurs hypothèses a été conservé), le rebond thermique ne devrait prendre place et n'être mesurable que dans le domaine sub-nanométrique, en-dessous de 1 nm. Ceci permet d'expliquer pourquoi la plupart des études menées jusqu'à présent (tableaux I-5 et I-6), y compris celle présentée ici, n'a abouti à l'observation d'aucune augmentation de perméance, même pour de simples grilles et des particules pourtant inférieures à 10 nm. Il est à noter que cette valeur limite de 1 nm pour l'observation d'un éventuel rebond thermique concorde avec les calculs de dynamique moléculaire réalisés récemment par Sato et al. (2007).

Afin de nous rendre compte à partir de quel diamètre un rebond des particules aurait pu avoir lieu dans nos conditions expérimentales, nous avons recalculé la perméance théorique de particules de cuivre, entre 0,06 et 50 nm de diamètre, au travers de la grille inox 25 à 5 $cm.s^{-1}$, en tenant compte de ε pour un tel cas (figure III-26). L'efficacité d'adhésion η est calculée à partir de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980), et la constante d'Hamaker A, pour l'interaction métal-métal considérée, est prise égale à $4{,}0 \times 10^{-19}$ J (tableau III-3).
Est ensuite représenté figure III-27 le paramètre de Tabor Ta, pour différentes valeurs de Δγ, seule inconnue de notre système. K_s et K_p sont respectivement prises égales à $1{,}39 \times 10^{-12}$ $m^2.N^{-1}$ (acier) et $2{,}16 \times 10^{-12}$ $m^2.N^{-1}$ (cuivre), en accord avec le tableau I-4.

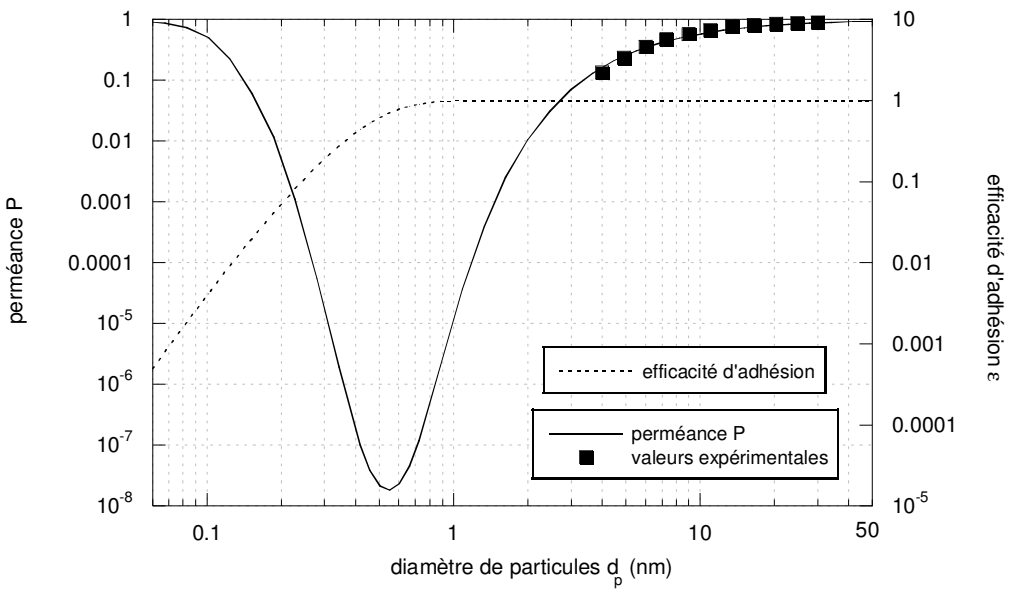


Figure III-26 : Perméance au travers de la grille inox 25 à 5 cm.s^{-1} en considérant la possibilité d'un rebond thermique des particules, calculé à partir de l'équation (III-21)

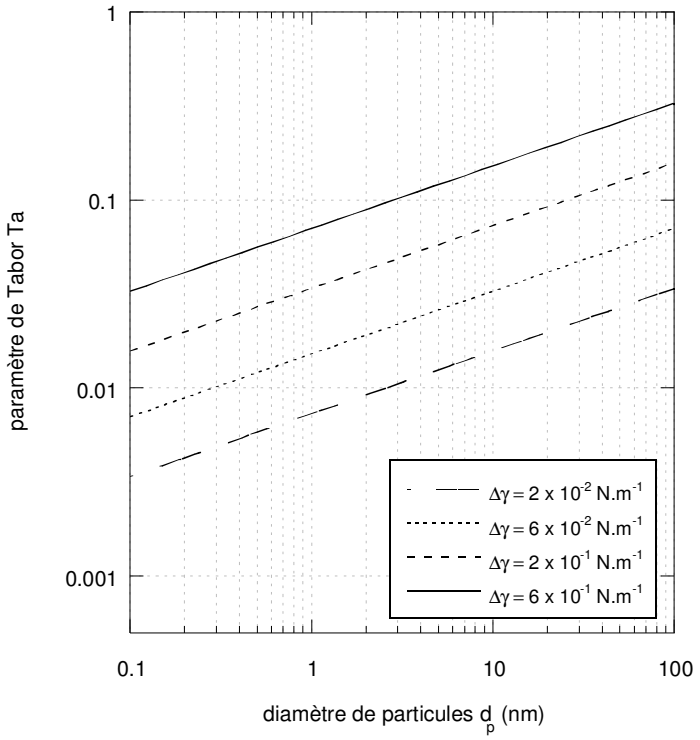


Figure III-27 : Evolution du paramètre de Tabor en fonction du diamètre de particules et du travail d'adhésion $\Delta\gamma$ du système considéré (acier-cuivre)

Ainsi, d'après nos calculs et selon la figure III-26, aucune remontée de perméance due à un rebond thermique des particules n'était à attendre avant 0,5 nm (minimum de perméance), ce qui se situe bien en-dessous des capacités de mesure actuelles. La figure III-27 confirme par ailleurs que le modèle de Bradley-Hamaker est ici le plus approprié pour l'estimation de E_{ad}.

En effet, le paramètre de Tabor ne dépasse 0,1 que pour les particules les plus grosses, pour de très fortes valeurs de $\Delta\gamma$, et est d'autant plus faible que d_p diminue.

Comme expliqué au chapitre I, Shin et al. (2008) ont récemment travaillé jusqu'à 500 K, en vue d'observer un rebond thermique pour des diamètres de particules plus importants, entre 3 et 20 nm. Selon nous, et bien que le $d_{p,X}$ se déplace effectivement vers les plus grosses particules lorsque T augmente, cette tentative était vaine car même en montant à 1000 K (en supposant que le média résiste à une telle température), la courbe théorique de perméance de leur média (grille d'acier de 90 µm de diamètre de fibres, pour une compacité α de 0,3105) ne présente son minimum qu'aux environs de 1 nm (figure III-28). L'influence de T sur le libre parcours moyen λ_g et la viscosité μ_g du gaz porteur [équations (I-19) et (I-20)] a été prise en compte.

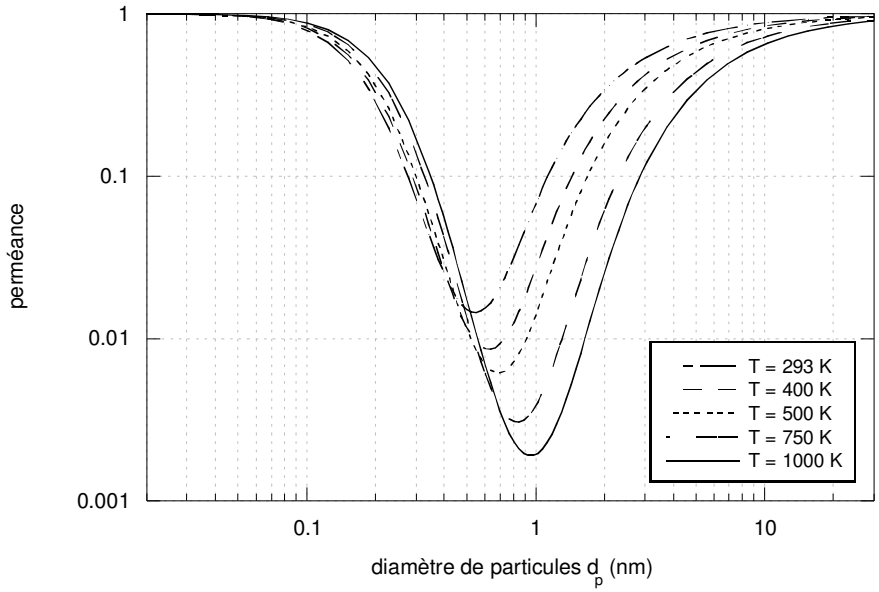


Figure III-28 : Evolution théorique de la perméance du système étudié par Shin et al. (2007) (d_f = 90 µm, α = 0,3105 et U = 7,04 cm.s^{-1}) en fonction de la température

Remarquons que d'après la figure III-28, pour une taille de particule supérieure à $d_{p,X}$, l'efficacité croît avec la température, ce qui peut être expliqué par l'augmentation de l'agitation brownienne de l'aérosol. En revanche, pour des particules dont la taille est inférieure à $d_{p,X}$, E diminue lorsque T augmente. Ce résultat rappelle là encore l'adsorption des gaz. En effet, pour un adsorbant donné, la capacité d'adsorption diminue avec l'augmentation de la température.

Pour conclure, le manque de cohérence entre les expériences menées jusqu'à présent dans le domaine nanométrique et la théorie du rebond thermique peut finalement être expliqué. En utilisant des expressions a priori plus appropriées pour le calcul des forces d'adhésion, et un ordre de grandeur plus « raisonnable » que Wang et Kasper pour la constante d'Hamaker, la diminution potentielle de l'efficacité de filtration ne devrait survenir « au mieux » (ou « au pire », c'est selon) qu'en-dessous de 1 nm, même à très haute température. Cette valeur apparaît comme un maximum puisqu'elle a été obtenue en considérant une interaction parmi les plus faibles possibles.

Chapitre IV
-
Efficacité des Filtres Non-Tissés

1. Présentation des médias

Bien qu'elles soient capables d'arrêter des proportions non négligeables de particules au regard de leurs propriétés physiques (à 5 cm.s^{-1}, la grille inox 40 parvient à collecter près de 80 % d'un aérosol de 4 nm, c'est-à-dire 10000 fois plus petit que son ouverture de maille ω), les grilles testées au chapitre III présentent des efficacités bien en dessous de celles qui peuvent être attendues de la part de masques respiratoires par exemple, de type FFP2 ou FFP3. Aussi, afin de répondre aux interrogations du monde industriel concernant les moyens de protection vis-à-vis des nanoparticules (et notamment des ingénieurs en hygiène, sécurité, environnement, des médecins du travail et des responsables de Caisses Régionales d'Assurance Maladie), nous avons testé un certain nombre de filtres non-tissés, plus proches de la structure des médias utilisés pour la confection de ces masques. Les caractéristiques géométriques de ces filtres sont rassemblées dans le tableau IV-1.

Tableau IV-1 : Caractéristiques géométriques des filtres non-tissés utilisés [voir aussi Frising (2004)]

nom du média	**R2033**	**A320**	**AX1923**	**D309**
fabricant	Reemay	Bernard Dumas	Lydall	Bernard Dumas
matériau	polyester	fibre de verre		
diamètre de fibres d_f (µm)	28,6	4,5	3,3	1,3
épaisseur Z (µm)	430	440	420	409
compacité α	0,214	0,060	0,065	0,078

L'A320 et l'AX1923 sont particulièrement proches l'un de l'autre, et ne diffèrent véritablement qu'au niveau de leur diamètre de fibres. Compte tenu de sa compacité plus élevée, pour des fibres qui plus est plus fines, le D309 devrait logiquement être le plus efficace des quatre filtres. Un cliché MEB de chaque média est proposé figure IV-1 ou IV-2. Compte tenu de son diamètre de fibres plus important, le Reemay 2033 y est présenté (à gauche figure IV-1) à un grossissement différent des trois autres ; comme on peut en partie l'apercevoir, les fibres de ce média ne sont pas cylindriques, mais trilobées.

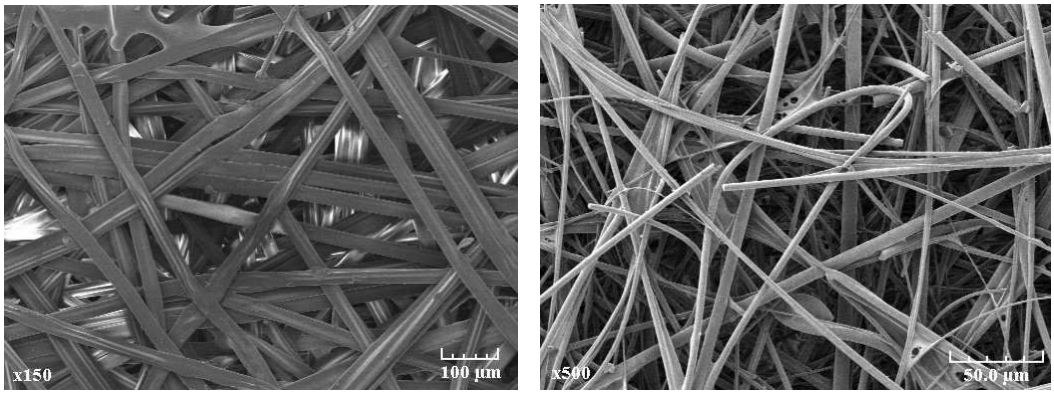


Figure IV-1 : Observation au microscope électronique à balayage du R2033 (à gauche) et de l'A320 (à droite)

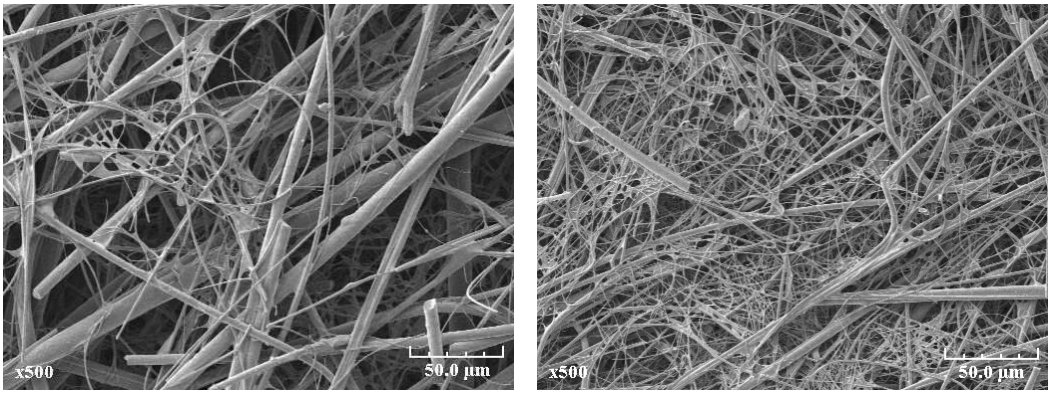


Figure IV-2 : Observation au microscope électronique à balayage de l'AX1923 (à gauche) et du D309 (à droite)

Le diamètre de fibres d_f présenté dans le tableau IV-1 correspond au diamètre de Davies, donné par la relation :

$$d_f = 2\sqrt{\frac{16\mu_g U Z \alpha^{3/2}\left(1+56\alpha^3\right)}{\Delta P_{f,0}}} \qquad \text{(IV-1)}$$

avec μ_g, la viscosité dynamique du gaz [équation (I-20)].

La mesure, appelée perméation, de la perte de charge $\Delta P_{f,0}$ du filtre vierge pour plusieurs vitesses d'écoulement U permet, à partir de la pente de la droite obtenue (figure IV-3), de déterminer d_f. Nous avons choisi de travailler avec ce diamètre car c'est également celui qu'ont utilisé Wang et al. pour établir l'expression $\eta_d = 0{,}84\ Pe^{-0{,}43}$ [tableau I-2]. Cependant, les distributions de taille de fibres, obtenues par analyse d'images pour chaque média, sont également fournies en annexe K.

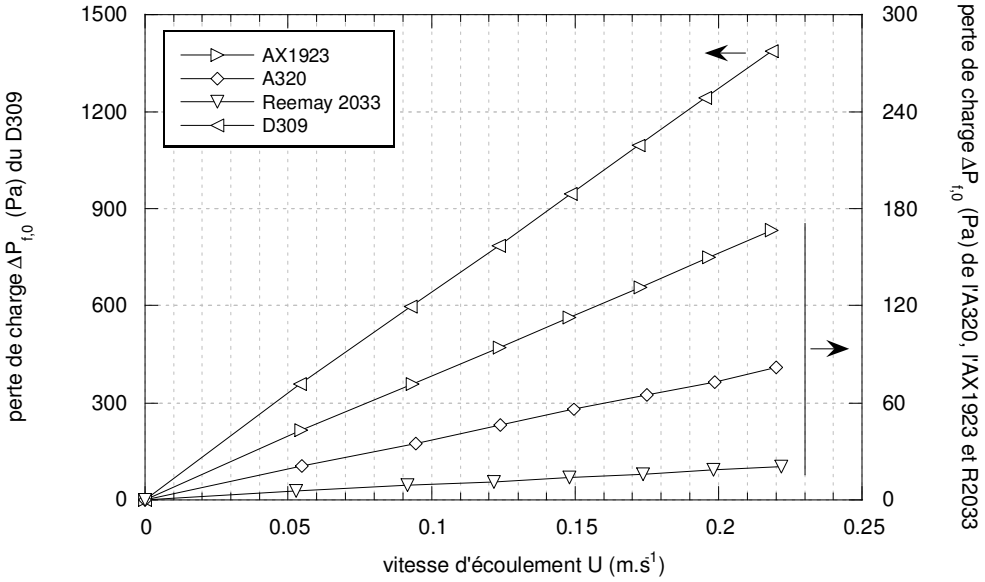


Figure IV-3 : Perte de charge des médias en fonction de la vitesse d'écoulement U

2. De la filtration d'aérosols globalement neutres à celle de particules non-chargées

2.1. Filtration d'aérosols globalement neutres

Les figures IV-4 et IV-5 présentent les perméances mesurées à 5 cm.s^{-1} pour les différents filtres vis-à-vis d'aérosols globalement neutres, et les comparent aux valeurs calculées à partir des modèles du tableau I-2 les plus récents, c'est-à-dire ceux de Liu et Rubow (1990), Payet et al. (1992) et Wang et al. (2007). Afin de voir l'influence de l'épaisseur du média, des tests ont été réalisés en plaçant deux filtres R2033 en série (figure IV-4). A titre de comparaison, sont également représentés figure IV-4 les points expérimentaux et la courbe théorique de Cheng et Yeh (1980) pour la grille inox 25 (voir chapitre III).

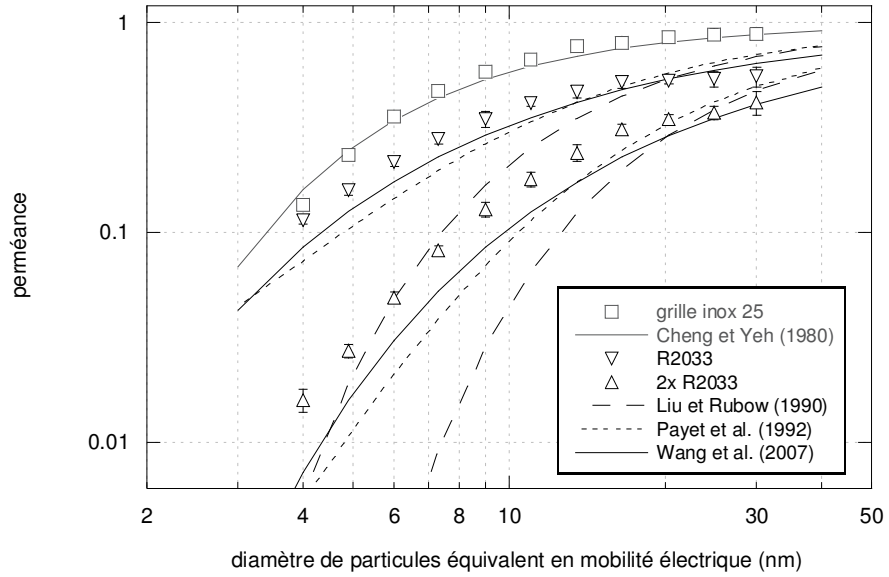


Figure IV-4 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre R2033 simple et doublé, à 5 cm.s^{-1}

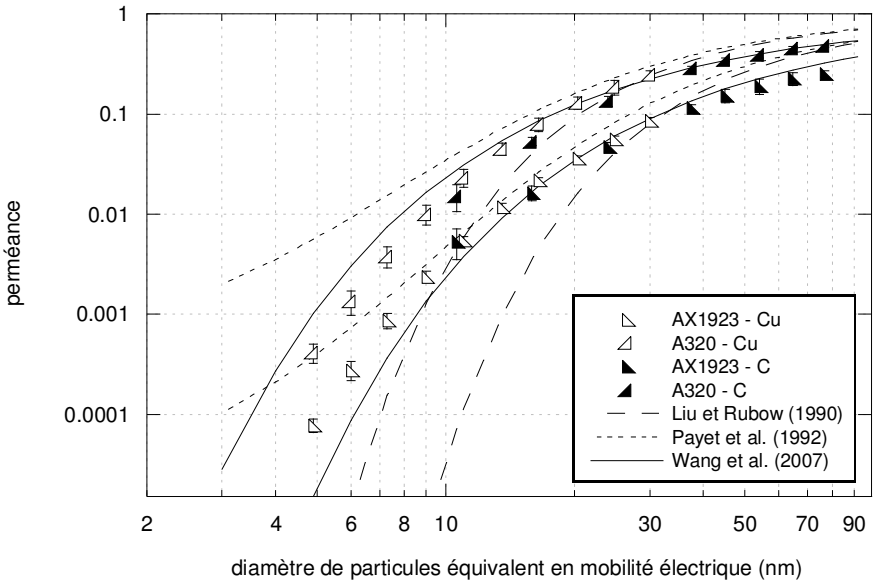


Figure IV-5 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers des filtres A320 et AX1923, à 5 cm.s^{-1}

La perméance des filtres est d'autant plus faible que le diamètre des particules est petit, y compris en-dessous de 10 nm : aucune remontée de perméance, et donc aucun phénomène de rebond thermique, n'est observé. Il est également intéressant de noter qu'aux alentours de 4 nm, la simple grille inox 25 est quasiment aussi efficace que le filtre R2033. Doubler l'épaisseur de ce dernier permet de diminuer sensiblement sa perméance (au prix, bien entendu, d'une perte de charge plus importante), sans pour autant atteindre le niveau d'efficacité d'un filtre A320 ou AX1923. Enfin, la nature chimique de l'aérosol ne semble pas avoir d'influence particulière sur l'efficacité.

Le modèle de Wang et al. (2007) semble en bon accord avec l'ensemble des points obtenus. Le terme correctif C_d' proposé par Payet et al. (1992) réduit significativement l'écart entre le modèle de Liu et Rubow (1990) et les valeurs de perméance P_{exp} mesurées. L'expression de Wang et al. (2007) reste néanmoins meilleure dans tous les cas, tout en étant beaucoup plus simple à calculer. Cette constatation reste valable pour une vitesse de filtration de 15 cm.s^{-1} (figure IV-6). Afin de ne pas surcharger la figure IV-6, le modèle de Liu et Rubow (1990), là encore en moins bonne adéquation avec les valeurs expérimentales que les deux autres, n'a pas été tracé.

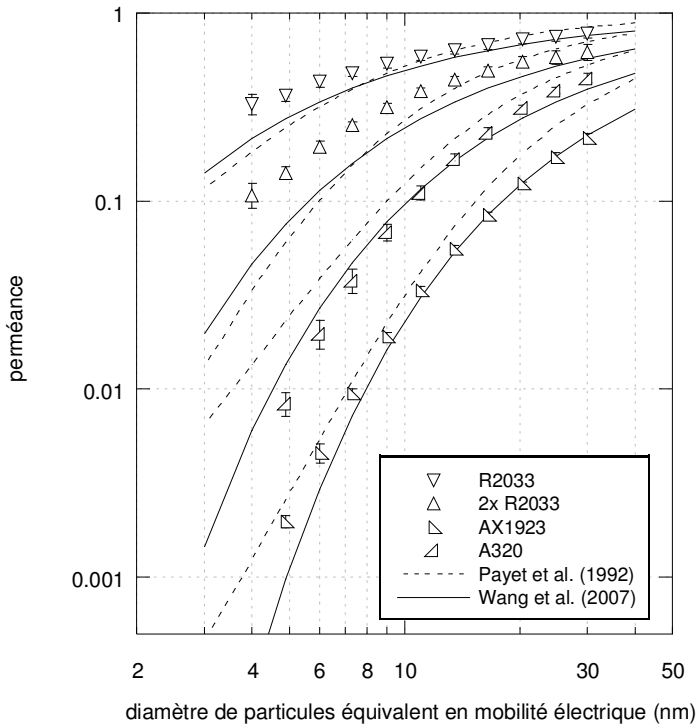


Figure IV-6 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers des filtres R2033 (simple et doublé), A320 et AX1923, à 15 cm.s^{-1}

La figure IV-6 confirme que le modèle de Wang et al. (2007) représente le mieux la perméance des particules ultrafines. L'accord moindre observé avec les perméances mesurées pour le Reemay R2033 (simple et doublé) est peut-être en partie dû à la forme particulière des fibres de ce filtre qui, comme énoncé plus haut, sont trilobées et non pas cylindriques.

Afin de les représenter tous sur un seul et même graphe, la figure IV-7 reprend l'ensemble des points présentés figures IV-4, IV-5 et IV-6 en termes d'efficacité unitaire de collecte η_{exp} [équation (III-1)] en fonction du nombre de Péclet Pe.

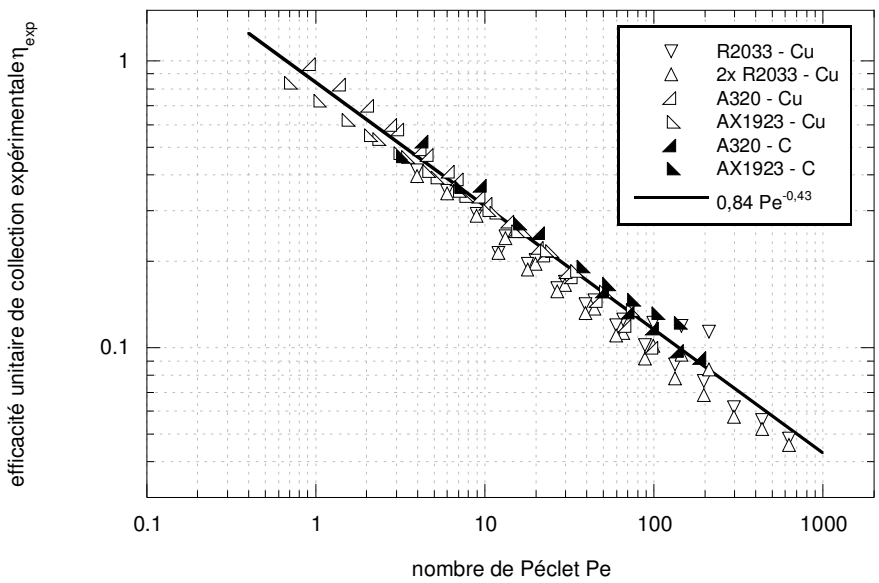


Figure IV-7 : Efficacité unitaire de collecte expérimentale η_{exp} en fonction du nombre de Péclet

L'expression 0,84 $Pe^{-0,43}$ représente donc bien la perméance de nanoaérosols globalement neutres au travers de filtres non-tissés. On peut toutefois s'interroger sur le fondement de cette équation. En effet, comme nous avons pu le voir en détails au chapitre III, un aérosol à l'équilibre de Boltzmann [tels que ceux générés par Kim et al. (2007) et Japuntich et al. (2006), dont les points ont servi à l'établissement du modèle de Wang et al. (2007)], dit globalement neutre, est en fait composé de particules non-chargées, mais également d'une fraction non nulle [1 − g(0)] de particules porteuses de charges [uniquement monochargées en-dessous de 20 nm, en partie bichargées entre 20 et 100 nm (figure II-4)]. Ne considérer que la diffusion brownienne, au travers du nombre de Péclet, comme mécanisme de collecte pour ces particules nous semble dès lors incorrect d'un point de vue physique. Des forces électrostatiques vont certainement intervenir également, selon la nature des fibres. La fraction de particules chargées constituant l'aérosol globalement neutre va alors être en partie piégée par diffusion, mais aussi (voire surtout) par ces forces électrostatiques. Au final, le modèle de Wang et al. représente l'efficacité unitaire de collecte d'un aérosol ultrafin à l'équilibre de Boltzmann, mais pas l'efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne η_d.

2.2. Filtration de particules non-chargées

Nous reprenons donc la méthode suivie au chapitre III pour déterminer la perméance P(0) « expérimentale » de particules 0-chargées [équation (III-11), et (IV-2)]. Notre objectif est d'extraire de nos données un modèle permettant de représenter la seule et unique efficacité de collecte par diffusion brownienne. Or, les seules particules à n'être rigoureusement piégées que par ce mécanisme sont les particules non-chargées (on suppose que les fibres des filtres ne sont pas chargées ou, à défaut, que les forces de polarisation sont négligeables). La perméance des particules doublement chargées, non déterminable expérimentalement, est supposée nulle et donc:

$$P(0)_{exp} = \frac{P_{exp} - [g(1) \times P(1)_{exp} + g(-1) \times P(-1)_{exp}]}{g(0)} \qquad \text{(IV-2)}$$

Les perméances $P(1)_{exp}$ et $P(-1)_{exp}$ mesurées pour des particules monochargées positives et négatives seront présentées dans la partie 3 de ce chapitre.

Si la différence entre P(0) et P_{exp} est peu significative pour les particules très fines [car g(0) proche de 1], elle va en revanche être d'autant plus grande que le diamètre de l'aérosol augmente, puisque g(0) va diminuer tandis que g(1) et g(−1) vont augmenter [de même que $P(1)_{exp}$ et $P(-1)_{exp}$, voir partie 3]. A partir de l'équation (IV-2), il est possible d'écrire :

$$\eta_0 = \frac{(\alpha - 1)\,\pi\, d_f}{4\,\alpha\, Z} \ln\left(\frac{P_{exp} - [g(1)\times P(1)_{exp} + g(-1)\times P(-1)_{exp}]}{g(0)}\right) \qquad \text{(IV-3)}$$

avec η_0, l'efficacité unitaire de collecte pour des particules non-chargées. La figure IV-8 représente η_0 en fonction de Pe : dans tous les cas, $\eta_0 < \eta_{exp}$.

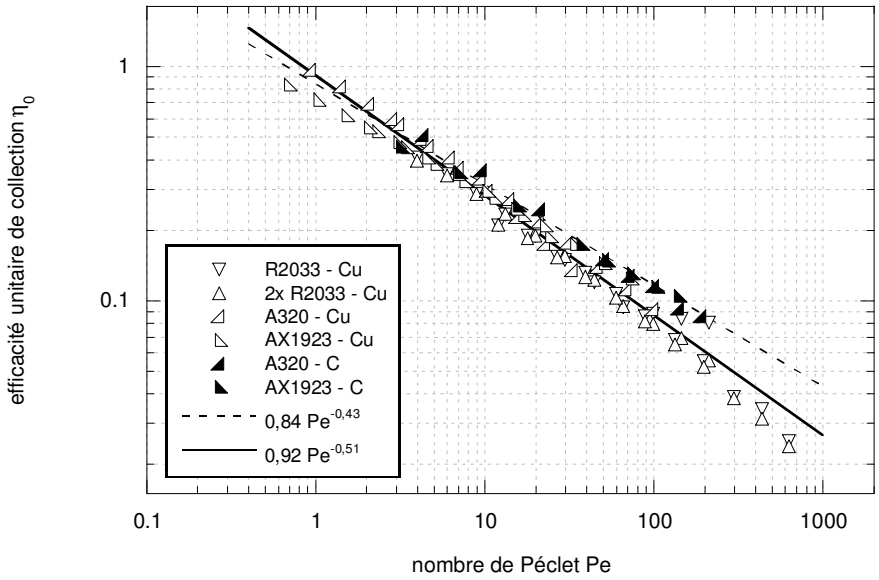


Figure IV-8 : Efficacité unitaire de collecte η_0 calculée pour des particules 0-chargées en fonction du nombre de Péclet

La courbe représentant au plus près η_0 en fonction de Pe a pour équation 0,92 $Pe^{-0,51}$ (coefficient de corrélation R^2 = 0,965). En ramenant la puissance du nombre de Péclet à un strict −1/2 (à noter que cet exposant avait été proposé en 1978 par Kirsch et Stechkina [tableau I-2]), on aboutit à :

$$\eta_0 = 0{,}87\ Pe^{-1/2} = \eta_d \qquad \text{(IV-4)}$$

pour un R^2 sensiblement identique [contre 0,949 pour l'expression de Wang et al. (2007)].
Selon nous, et même si l'écart entre les deux reste relativement faible, notre équation (IV-4) exprime plus rigoureusement la composante exclusivement diffusionnelle de l'efficacité de collecte des nanoparticules que le modèle de Wang et al. (2007). Si ce dernier reste utilisable, et plutôt efficient pour représenter la perméance d'aérosols nanométriques globalement neutres (figure IV-7), il demeure discutable sur le fond.

Aucun point n'a jusqu'à présent été présenté pour le filtre D309 ; celui-ci s'avère en effet si efficace qu'aucune concentration particulaire C_{aval} n'est mesurable pour ce média sur la plage 4-30 nm. La figure IV-9 confirme cet état de fait : la perméance théorique à 5 cm.s^{-1} calculée à partir du modèle de Wang et al. (2007) y est représentée et apparaît bien en-dessous de la zone de perméance mesurable P_{lim} (figure II-24). Cette impossibilité à déterminer la moindre valeur de perméance sera également constatée pour ce filtre vis-à-vis d'aérosols chargés.

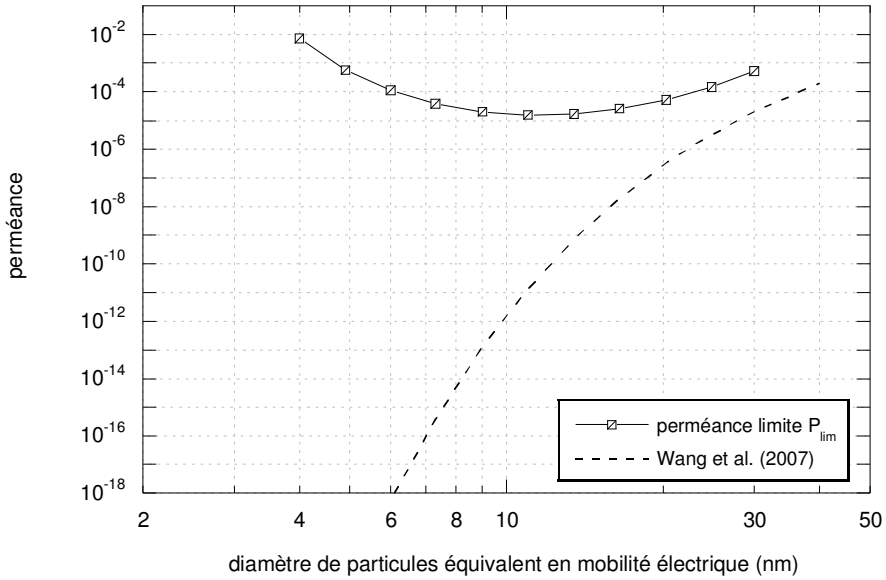


Figure IV-9 : Perméance théorique du filtre D309, à 5 cm.s^{-1}

3. Filtration d'aérosols chargés

3.1. Cas du filtre Reemay R2033

Les figures IV-10 et IV-11 représentent les perméances à 5 cm.s^{-1} de particules de cuivre monochargées, positivement ou négativement, respectivement au travers d'un puis deux filtres R2033. Les courbes obtenues à partir de l'équation (IV-4), qui représente la seule part diffusionnelle de la collecte des particules, sont également représentées, afin de bien voir l'effet dû à la charge portée. Les valeurs mesurées à 15 cm.s^{-1} sont présentées figure IV-12 (particules négatives non-testées).

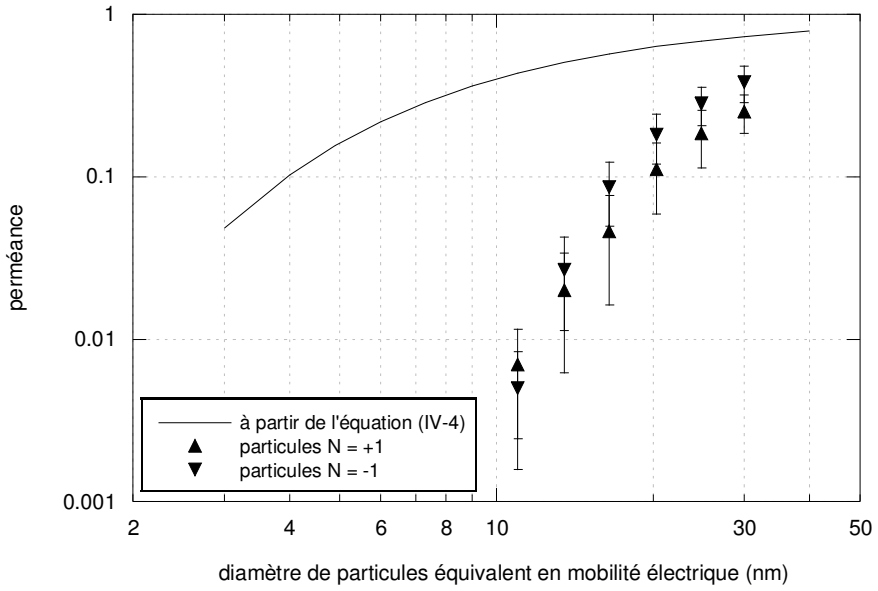


Figure IV-10 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers un filtre R2033, à 5 cm.s^{-1}

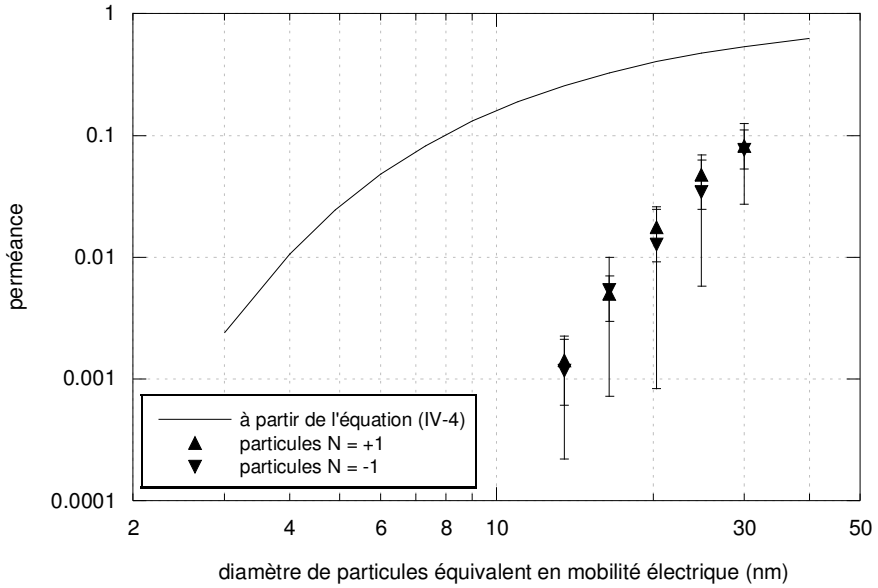


Figure IV-11 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers de deux filtres R2033 en série, à 5 cm.s^{-1}

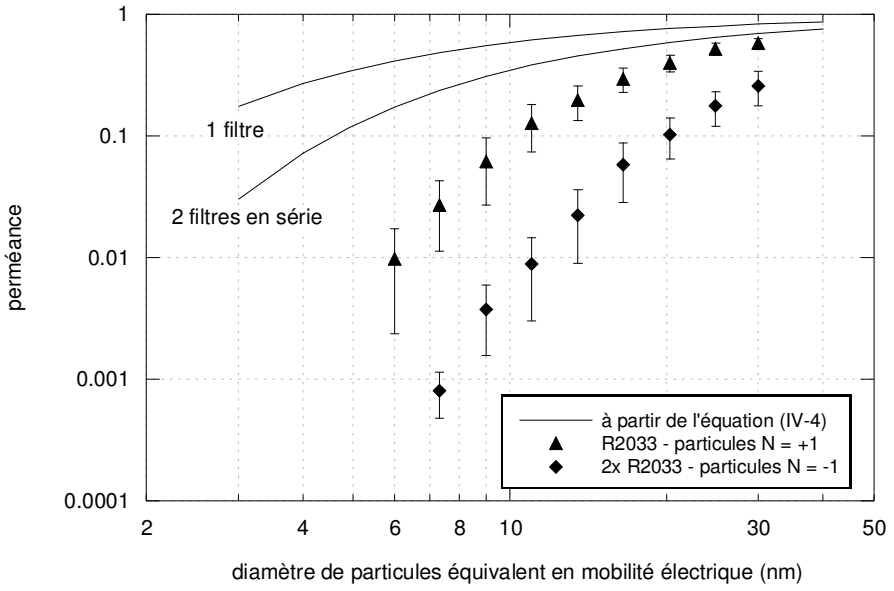


Figure IV-12 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers de deux filtres R2033 en série, à 15 cm.s^{-1}

L'efficacité des filtres est nettement plus grande pour des aérosols chargés que pour des aérosols non-chargés. De plus, l'écart entre les perméances correspondantes augmente lorsque le diamètre de particules diminue. On retrouve donc le même type de comportement que pour les grilles nylon 75 et fluortex 150. Le média R2033 est en polyester. Compte tenu des doublets non liants de l'atome d'oxygène situé à côté de la double-liaison C=O, des charges peuvent, comme pour le polyamide de la grille nylon 75 (figure III-15), apparaître par résonance (figure IV-13). Fibres et particules sont donc chargées ; des forces coulombiennes sont susceptibles de participer à la collecte des aérosols.

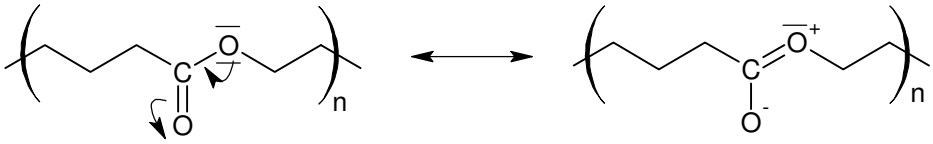


Figure IV-13 : Formes de résonance d'une fonction ester

Afin de comparer l'ordre de grandeur de ces forces coulombiennes par rapport à la diffusion brownienne, est représentée figure IV-14 l'efficacité unitaire de collecte expérimentale $\eta_{exp,|N|=1}$ [équation (III-1)] en fonction de η_0 [équation (IV-3)].

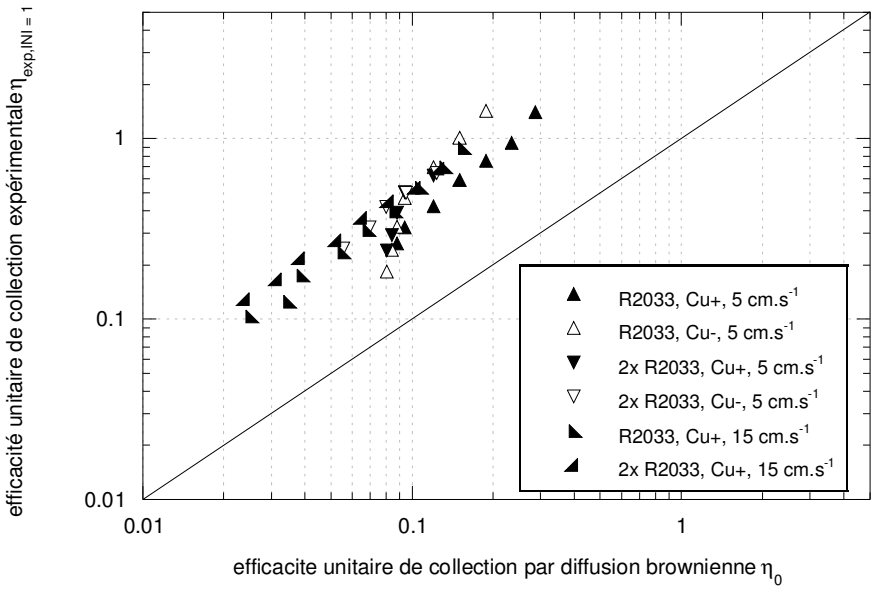


Figure IV-14 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de η_0 pour le média R2033

$\eta_{exp,|N|=1}$ n'est que 3 à 7 fois supérieure à η_0, là où un facteur 20, voire 80, était observé pour les grilles synthétiques. La diffusion brownienne ne peut donc pas être totalement négligée ici. En supposant que les forces coulombiennes et la diffusion brownienne sont deux mécanismes de capture indépendants l'un de l'autre, l'efficacité unitaire de collecte par effet électrostatique $\eta_{qq,|N|=1}$ peut s'écrire :

$$\eta_{qq,|N|=1} = \eta_{exp,|N|=1} - \eta_0 \qquad \text{(IV-6)}$$

La modélisation de $\eta_{qq,|N|=1}$ nécessite la connaissance de la densité de charges portées par les fibres du média. Or, cette dernière nous est inconnue. Afin de l'estimer, comme dans le cas des grilles synthétiques, nous écrivons, à partir de Kraemer et Johnstone (1955) [tableau I-7] :

$$\eta_{qq,|N|=1} = \lambda \frac{Z_p}{U \varepsilon_0 d_f} \qquad \text{(IV-7)}$$

$\eta_{qq,|N|=1}$ est ensuite représentée en fonction de Z_p / U ε_0 d_f (figure IV-15).

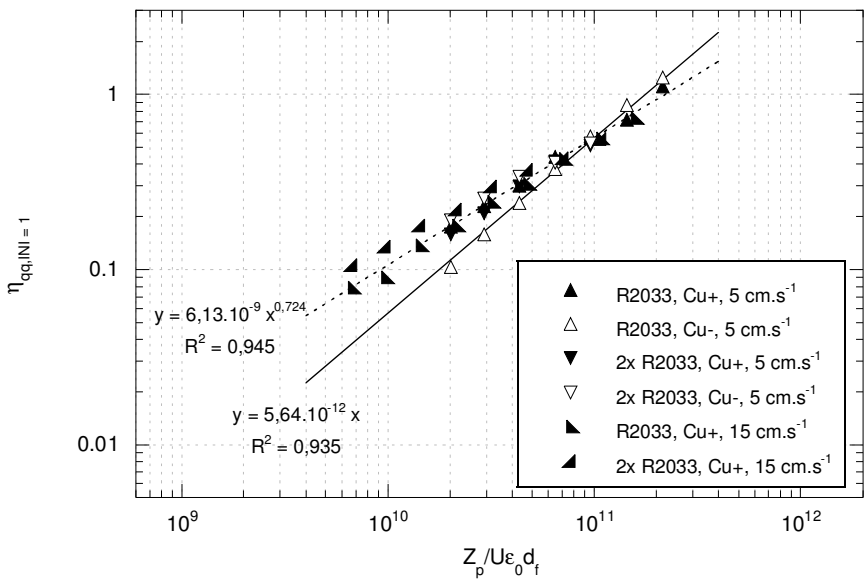


Figure IV-15 : Détermination de la densité linéique de charge λ pour le média R2033

Il apparaît figure IV-15 que nos points sont mieux représentés par une loi de type puissance que par une droite passant par l'origine, avec :

$$\eta_{qq,|N|=1} = 6{,}13 \times 10^{-9} \left(\frac{Z_p}{U \varepsilon_0 d_f} \right)^{0{,}724} \qquad \text{(IV-8)}$$

L'exposant porté par Z_p / U ε_0 d_f est proche de 3/4, ce qui est également, selon Stenhouse (1974) et Kraemer et Johnstone (1955), la puissance à laquelle doit être élevé N_{q0} dans le cas des forces de polarisation [tableau I-7]. En ramenant 0,724 à 0,75, il vient :

$$\eta_{qq,|N|=1} = 3{,}31 \times 10^{-9} \left(\frac{Z_p}{U \varepsilon_0 d_f} \right)^{3/4} \qquad \text{(IV-9)}$$

La densité linéique de charges λ reste encore à extraire de $3{,}31 \times 10^{-9}$. En conservant le terme π de Kraemer et Johnstone (1955) devant N_{qq} :

$$\lambda = \left(\frac{3{,}31 \times 10^{-9}}{\pi^{1/4}} \right)^{4/3} \approx 3{,}37 \times 10^{-12}\ \text{C.m}^{-1} \qquad \text{(IV-10)}$$

soit, d'après l'expression (III-7) :

$$\sigma \approx 3{,}75 \times 10^{-8}\ \text{C.m}^{-2} \qquad \text{(IV-11)}$$

En résumé, dans le cas d'un média synthétique non-tissé, et selon le raisonnement suivi, l'efficacité unitaire de collecte de particules monochargées $\eta_{|N|=1}$ peut être représentée par :

$$\eta_{|N|=1} = 0{,}87\ Pe^{-1/2} + \pi\ N_{qq}^{3/4} \qquad \text{(IV-12)}$$

avec $N_{qq} = \dfrac{\lambda\, Z_p}{\pi\, U\, \varepsilon_0\, d_f}$.

Aucun filtre diélectrique autre que le R2033 n'ayant été testé, l'expression (IV-12) ne peut être confrontée à d'autres points expérimentaux que ceux ayant servis à son établissement. Afin de confirmer cette équation, l'idéal serait de pouvoir travailler avec des médias dont la densité de charges λ ou σ est parfaitement connue et maîtrisée. Cela permettrait en outre d'affiner le modèle. En effet, par exemple, rien ne nous permet d'affirmer que la constante devant le terme N_{qq} est bien égale à π. Cette valeur a simplement été conservée afin que les valeurs aux limites de η_{qq} lorsque N_{qq} tend vers 0, l'infini et 1 soient égales à celles du modèle de Kraemer et Johnstone (1955).

Pour conclure avec le Reemay R2033, il nous paraît intéressant de comparer la perméance à 5 cm.s^{-1} d'aérosols de cuivre monochargés et 0-chargés au travers de ce média, à celle de ces mêmes aérosols au travers des grilles nylon 75 et fluortex 150 (figures IV-16 et IV-17). Les courbes théoriques calculées à partir des expressions (IV-12) et (III-6) sont également représentées figure IV-16. Les points P(0) de la figure IV-17 correspondent aux valeurs calculées selon (IV-2) et (III-11) [dans le cas des grilles, ces points ont déjà été représentés figure III-22].

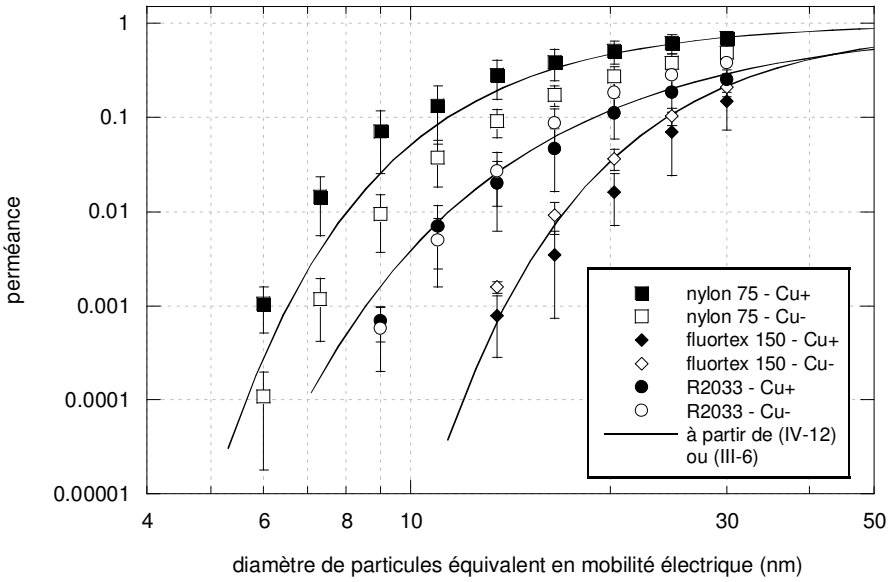


Figure IV-16 : Comparaison de la perméance de particules de cuivre monochargées au travers du filtre R2033 et des grilles nylon 75 et fluortex 150, à 5 cm.s^{-1} (λ_{R2033} = 3,37 pC.m^{-1} ; $\lambda_{nylon75}$ = 36,4 pC.m^{-1} ; $\lambda_{fluortex150}$ = 306 pC.m^{-1})

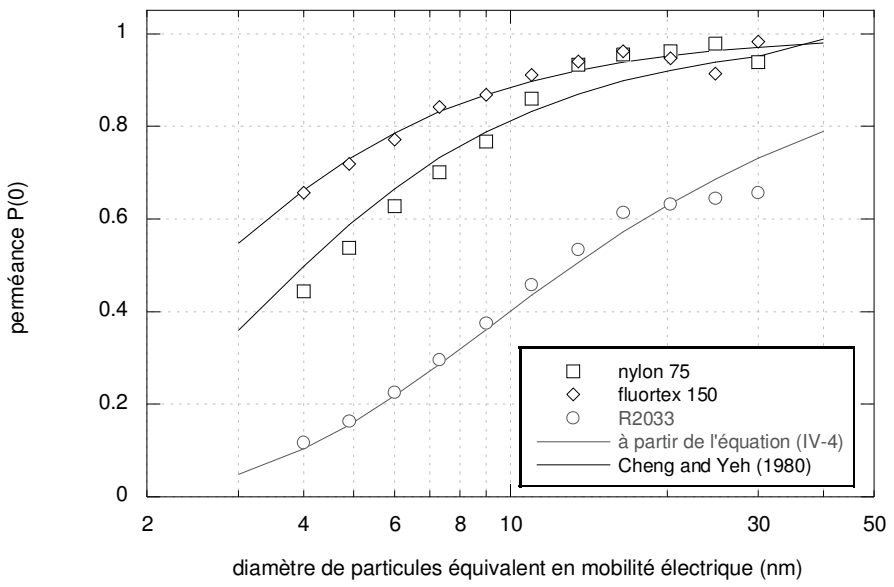


Figure IV-17 : Comparaison de la perméance de particules de cuivre non-chargées au travers du filtre R2033 et des grilles nylon 75 et fluortex 150, à 5 cm.s^{-1}

Ainsi, le filtre R2033 est plus efficace vis-à-vis d'aérosols chargés que la grille nylon 75 mais moins que la fluortex 150, ce qui n'est pas le cas pour des particules 0-chargées, pour lesquelles le R2033 est alors plus efficace que les deux grilles. Ceci est essentiellement dû au fait que le filtre de chez Reemay a une densité de charges surfacique σ beaucoup plus faible que les grilles. S'il parvient à « compenser » des effets électrostatiques moindres comparé à la grille nylon 75 par son épaisseur Z plus importante et un diamètre de fibres plus fin, la grille fluortex 150 demeure, compte tenu de son σ, plus efficace que les deux autres médias.
On entrevoit dès lors tout l'intérêt qu'offrirait dans le domaine ultrafin un média aux caractéristiques géométriques proches du R2033 mais aux fibres en ETFE. Les figures IV-18 et IV-19 présentent les perméances théoriques d'un tel filtre pour les différents types d'aérosols considérés dans cette étude (non-chargés, globalement neutres et monochargés), et les comparent à celle du R2033 commercialisé. Les courbes de la figure IV-18 sont calculées à partir de l'équation (IV-11) avec $\lambda = 3{,}37 \times 10^{-12}$ C.m^{-1} (R2033 commercialisé) et $\lambda = 8{,}34 \times 10^{-11}$ C.m^{-1} (R2033 "en ETFE"). En effet, afin de tenir compte de la différence de diamètre de fibres entre la grille fluortex 150 et le Reemay R2033, nous avons considéré que la densité surfacique de charge σ était indépendante de d_f, contrairement à λ. Dès lors :

$$\lambda = \sigma \, \pi \, d_f \qquad \text{(IV-13)}$$

avec $\sigma = 9{,}28 \times 10^{-7}$ C.m^{-2} pour l'ETFE, et $d_f = 28{,}6$ µm (tableau IV-1).

Les courbes de la figure IV-18 ont été calculées à partir de l'équations (IV-4) pour les particules non-chargées et de l'équation (III-9) pour les aérosols globalement neutres [les termes P(0), $P(|N| = 1)$ et $P(|N| = 2)$ étant alors remplacés par les formules correspondantes]. A titre de comparaison, la courbe donnée par le modèle de Wang et al. (2007) sur la plage d'étude considérée est également représentée.

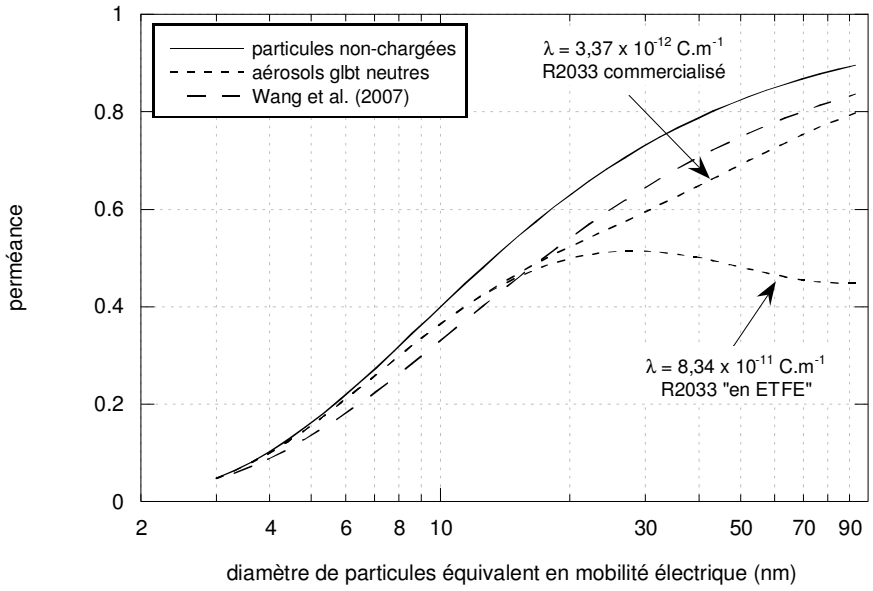


Figure IV-18 : Perméances théoriques d'aérosols nanométriques non-chargés et globalement neutres en fonction de la densité de charges des fibres du média R2033, à 5 cm.s^{-1}

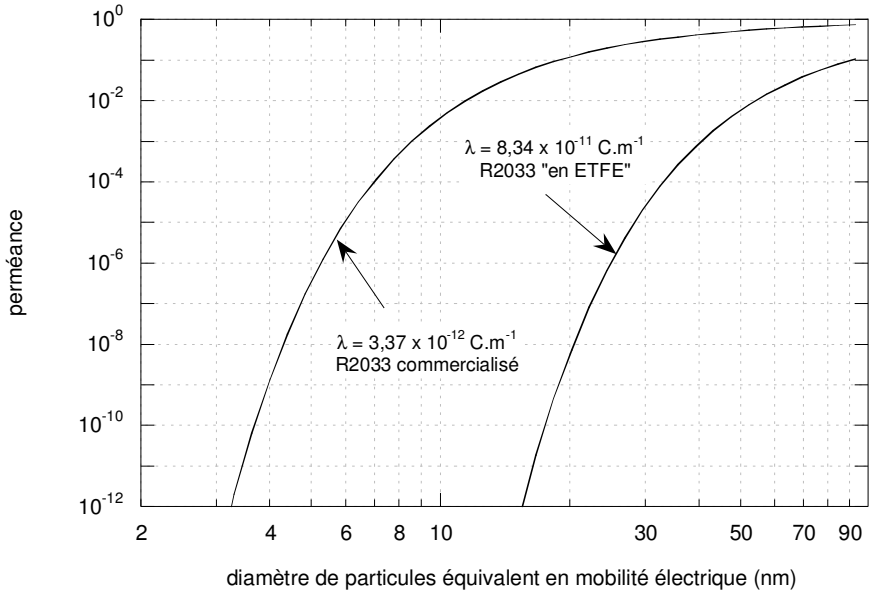


Figure IV-19 : Perméances théoriques d'aérosols nanométriques monochargés en fonction de la densité de charges des fibres du média R2033, à 5 cm.s^{-1}

La perméance des particules 0-chargées est identique dans les 2 cas, car indépendante de λ. L'efficacité vis-à-vis d'aérosols globalement neutres est en revanche sensiblement améliorée au-dessus de 20 nm lorsque les fibres sont "en ETFE", en raison d'une proportion de particules chargées augmentant au fur et à mesure que le diamètre d_p augmente. Or, la perméance des particules chargées varie fortement avec la densité de charges λ du média (figure IV-19). On peut également voir figure IV-18 que si l'expression de Wang et al. (2007) représente raisonnablement bien la perméance d'aérosols à l'équilibre de Boltzmann au travers du média commercialisé, elle ne serait en revanche pas adaptée pour la modélisation d'un R2033 plus densément chargé [car le terme $\pi\ N_{qq}^{3/4}$ de l'équation (IV-12) devient alors prépondérant devant 0,87 $Pe^{-1/2}$ (diffusion) pour les fractions g(N) de particules chargées].

3.2. Cas des filtres A320 et AX1923

Les figures IV-20 et IV-21 représentent la perméance de particules de cuivre monochargées positives ou négatives au travers des filtres A320 et AX1923, à 5 cm.s^{-1}. Les courbes obtenues à partir de l'équation (IV-4) [diffusion seule] sont également tracées à titre de comparaison.

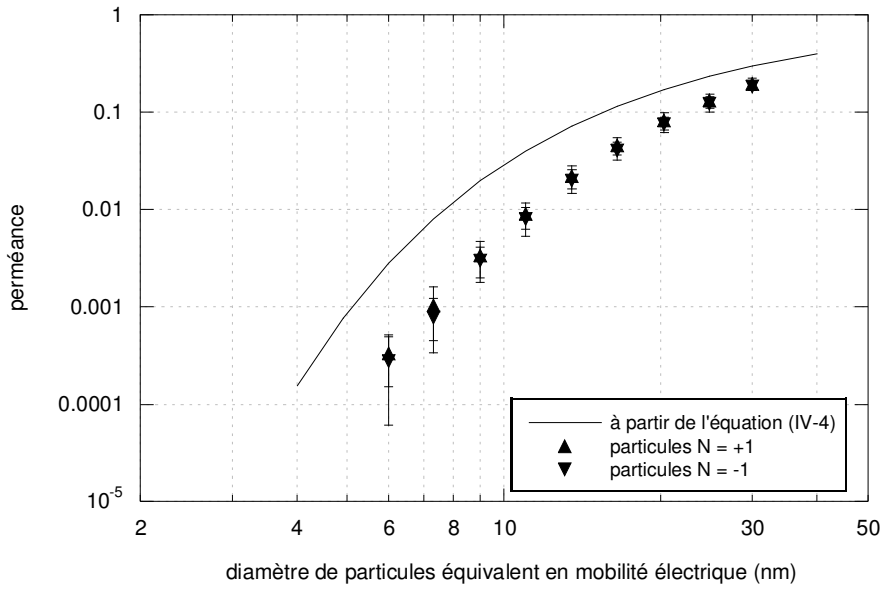


Figure IV-20 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers du filtre A320, à 5 cm.s^{-1}

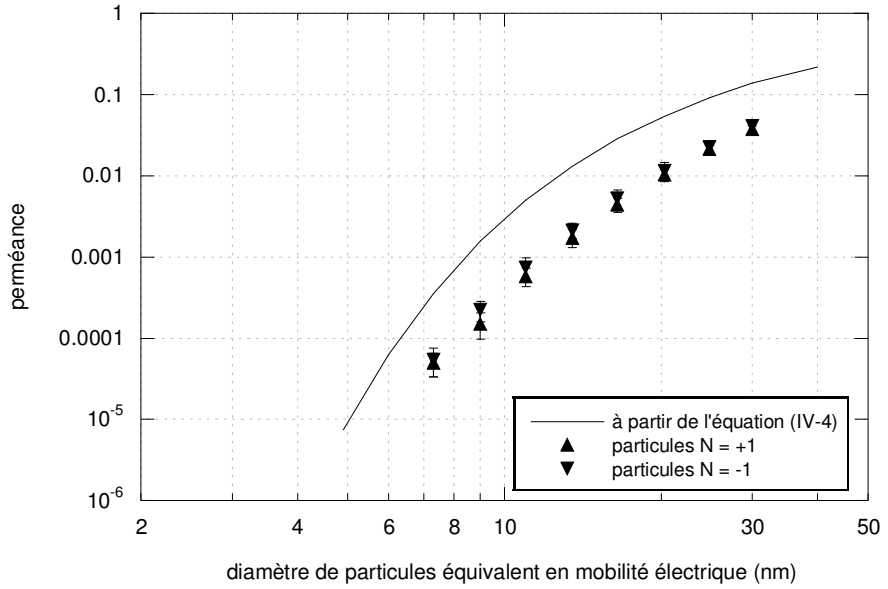


Figure IV-21 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers du filtre AX1923, à 5 cm.s^{-1}

La perméance des particules chargées est plus faible que celle des aérosols 0-chargés. De plus, il n'apparaît pas d'influence notable du signe des particules. Toutefois, contrairement à ce que nous avons observé jusqu'à présent avec les grilles ou le R2033, l'écart entre $P(|N| = 1)$ et la perméance de particules non-chargées n'évolue pas significativement lorsque le diamètre d'aérosol diminue. Ce constat est confirmé par la représentation de $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de η_0 (figure IV-22) :

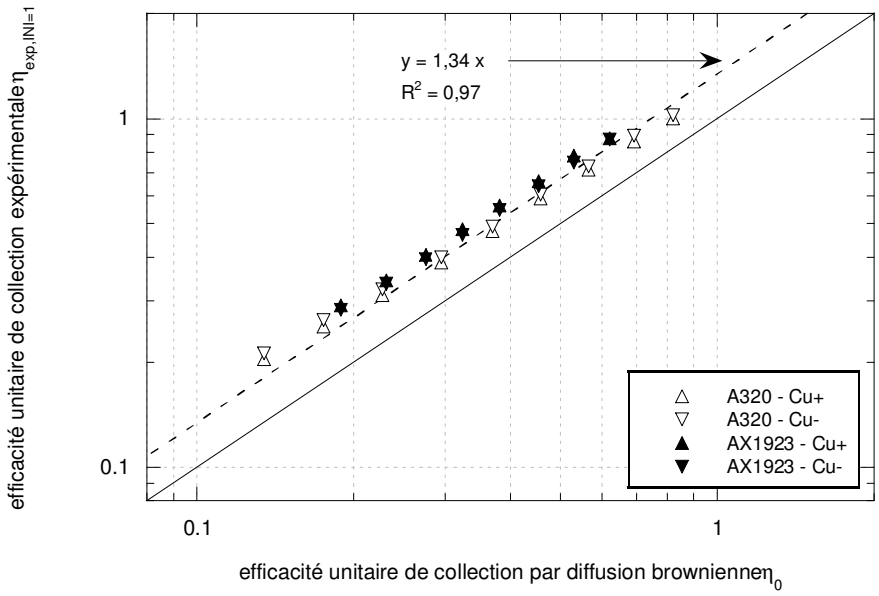


Figure IV-22 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de η_0 pour les filtres A320 et AX1923

Le rapport entre $\eta_{exp,|N|=1}$ et η_0 est très proche de 1. De plus, rien ne laisse à penser que les fibres de verre des médias A320 et AX1923 puissent être porteuses de charges. Il nous paraît donc peu probable que la faible différence entre $\eta_{exp,|N|=1}$ et η_0 s'explique ici par des forces coulombiennes. En revanche, si les fibres sont neutres et les particules chargées, la force image peut intervenir (tableau I-7).
En supposant, comme l'ont fait Alonso et al. (2007), que force image et diffusion brownienne sont deux mécanismes de capture indépendants l'un de l'autre :

$$\eta_{0q,|N|=1} = \eta_{exp,|N|=1} - \eta_0 \qquad \text{(IV-14)}$$

La force image est caractérisée par le paramètre adimensionnel N_{0q} tel que :

$$N_{0q} = \left(\frac{\varepsilon_f - 1}{\varepsilon_f + 1}\right)\frac{q^2\,Cu}{12\,\pi^2\,\mu\,U\,\varepsilon_0\,d_p\,d_f^2} \qquad \text{(IV-15)}$$

L'ordre de grandeur de la constante diélectrique du verre ε_f se situe entre 2 et 10. Afin de déterminer la relation liant nos $\eta_{0q,|N|=1}$ à N_{0q}, nous représentons les premiers en fonction des seconds calculés pour ces deux valeurs extrêmes de ε_f (figure IV-23). Les droites obtenues à partir des expressions de Lundgren et Whitby (1965) et Yoshioka et al. (1968) [tableau I-7], établies sur une gamme similaire de N_{0q}, sont également représentées.

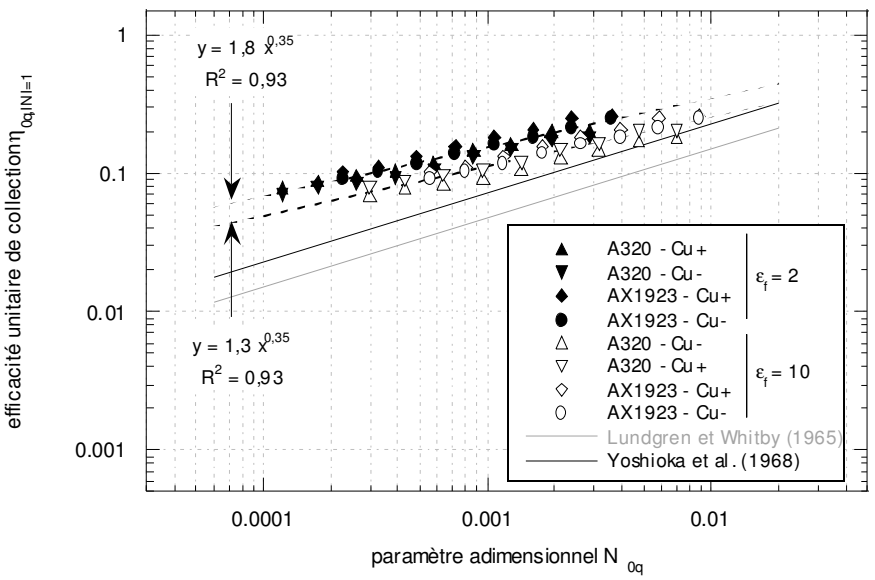


Figure IV-23 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{0q,|N|=1}$ des filtres A320 et AX1923 en fonction de N_{0q} calculé pour $\varepsilon_f = 2$ et $\varepsilon_f = 10$

Tout comme pour Lundgren et Whitby (1965) et Yoshioka et al. (1968), l'efficacité unitaire de collecte par force image évolue en fonction de N_{0q} selon une loi puissance. L'exposant p trouvé diffère cependant du 1/2 proposé par ces auteurs, dont les expressions tendent à sous-estimer $\eta_{0q,|N|=1}$. D'après nos mesures, $p \approx 0{,}35$, quel que soit ε_f, qui ne joue véritablement de rôle que sur la constante de proportionnalité γ devant N_{0q}. En ramenant p à 1/3 :

$$\eta_{0q,|N|=1} = \gamma\, N_{0q}^{1/3} \qquad \text{(IV-16)}$$

avec

$$1{,}15 < \gamma < 1{,}56 \qquad \text{(IV-17)}$$

Fixer p à 1/2, comme Lundgren et Whitby (1965) et Yoshioka et al. (1968), donnerait, outre un accord moindre avec nos points expérimentaux, un γ compris entre 2,93 et 4,56, soit un ordre de grandeur cohérent avec les expressions de ces deux équipes (tableau I-7). Les différences observées avec ces dernières peuvent s'expliquer par le fait que Lundgren et Whitby (1965) et Yoshioka et al. (1968) ont travaillé avec des particules entre 0,1 et 1 µm, fortement chargées (plusieurs centaines d'électrons) mais selon une quantité non maîtrisée ($|N|$ non fixée), et pour des fibres collectrices de plusieurs dizaines de micromètres. Nos particules sont inférieures à 100 nm, chargées unitairement de façon contrôlée, et nos fibres d'un diamètre de quelques micromètres seulement. Finalement :

$$\eta_{|N|=1} = 0{,}87\, Pe^{-1/2} + \gamma\, N_{0q}^{1/3} \qquad \text{(IV-18)}$$

La figure IV-24 reprend les points expérimentaux des figures IV-20 et IV-21, ainsi que les perméances mesurées pour des aérosols de carbone chargés supérieurs à 15 nm. La figure IV-25 présente quant à elle la perméance de particules de cuivre monochargées positives au travers des deux filtres A320 et AX1923, à 15 cm.s^{-1}. Les courbes théoriques tracées en trait continu correspondent à :

$$P = \exp\left[-4\frac{\alpha}{(1-\alpha)}\frac{Z}{\pi d_f}\left(0{,}87\,Pe^{-1/2} + \gamma\, N_{0q}{}^{1/3}\right)\right] \qquad \text{(IV-19)}$$

avec γ = 1,21 (valeur obtenue pour une constante diélectrique ε_f moyenne de 6).

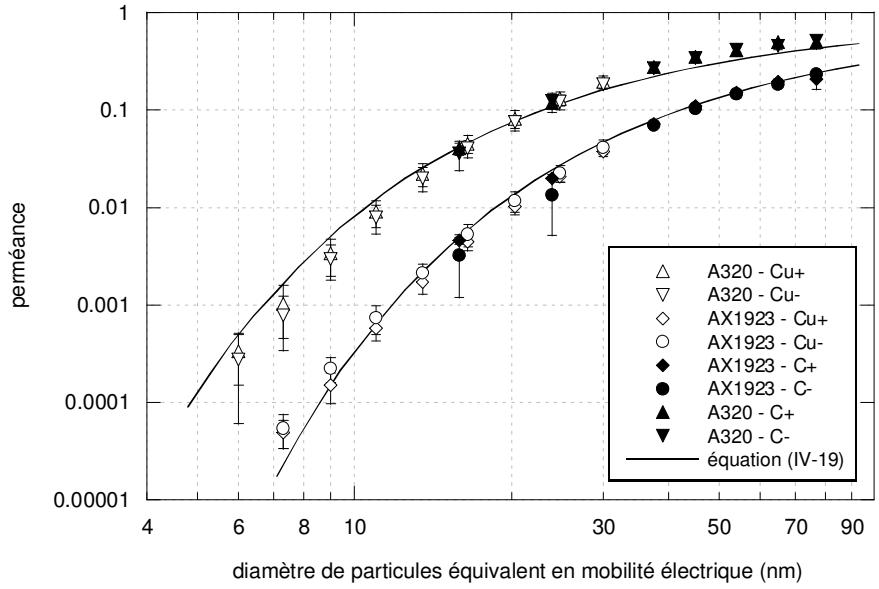


Figure IV-24 : Comparaison de l'équation (IV-19) aux perméances mesurées pour les filtres A320 et AX1923 dans le cas de particules de cuivre ou de carbone monochargées positives ou négatives, à 5 cm.s^{-1}

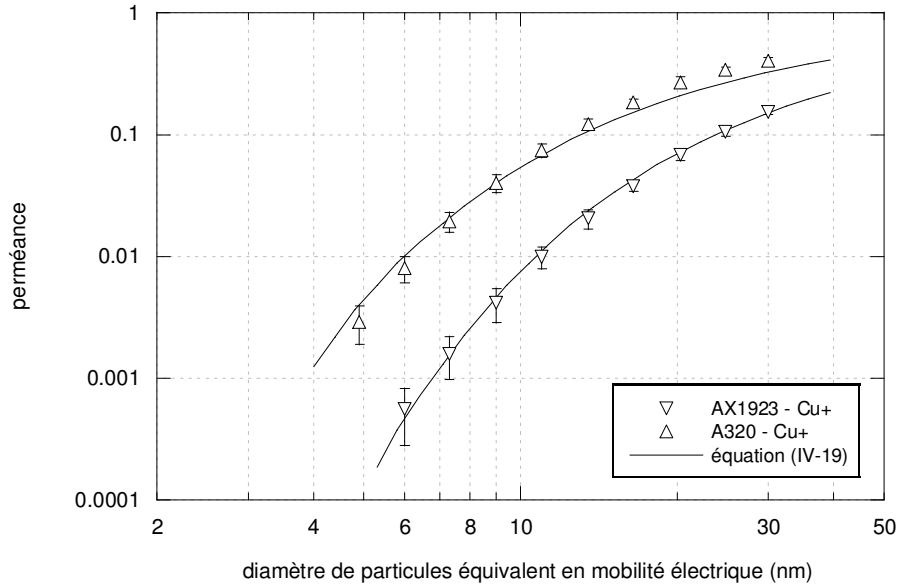


Figure IV-25 : Comparaison de l'équation (IV-19) aux perméances mesurées pour les filtres A320 et AX1923 dans le cas de particules de cuivre monochargées positivement, à 15 cm.s^{-1}

L'équation (IV-19) représente bien l'ensemble des résultats expérimentaux, y compris pour des particules de carbone jusque 80 nm et les perméances obtenues à 15 cm.s^{-1}.

4. Synthèse

Le tableau IV-2 récapitule l'ensemble des expressions établies ci-avant pour η ou P, selon les natures respectives du média collecteur et de l'aérosol filtré.

Tableau IV-2 : Expressions de η et P selon le cas rencontré

Type d'aérosol	Filtre non-tissé synthétique	Filtre non-tissé en fibres de verre
particules chargées	$\eta = 0{,}87\ Pe^{-1/2} + \pi\ N_{qq}^{3/4}$ avec $N_{qq} = \dfrac{\lambda\ Z_p}{\pi\ U\ \varepsilon_0\ d_f}$	$\eta = 0{,}87\ Pe^{-1/2} + \gamma\ N_{0q}^{1/3}$ avec $N_{0q} = \left(\dfrac{\varepsilon_f - 1}{\varepsilon_f + 1}\right)\dfrac{q^2\ Cu}{12\ \pi^2 \mu\ U\ \varepsilon_0\ d_p\ d_f^2}$ et $1{,}15 < \gamma < 1{,}56$
particules non-chargées	$\eta = 0{,}87\ Pe^{-1/2}$	
aérosol globalement neutre	$P = \sum_{N=-2}^{2}\left[g(N) \times P(N)\right]$ ou éventuellement, si $\pi\ N_{qq}^{3/4}$ suffisamment faible : $\eta = 0{,}84\ Pe^{-0{,}43}$	$P = \sum_{N=-2}^{2}\left[g(N) \times P(N)\right]$ ou éventuellement : $\eta = 0{,}84\ Pe^{-0{,}43}$

Dans le cas des filtres non-tissés synthétiques, les aérosols chargés sont arrêtés par diffusion et par forces coulombiennes, tandis que pour les filtres en fibres de verre, ils sont collectés par force image et diffusion brownienne. Par ailleurs, l'efficacité unitaire de collecte pour ce mécanisme, estimée par calcul [équation (IV-3)] en redéterminant à partir de nos mesures la perméance de la seule fraction g(0) des aérosols à l'équilibre de Boltzmann, s'exprime selon le nombre de Péclet à la puissance −1/2, et non −2/3 comme dans la majorité des relations du tableau I-2.
De plus, selon nous, et en toute rigueur, la perméance pour des aérosols globalement neutres doit être calculée en tenant compte des mécanismes respectifs de chaque proportion g(N) de particules. Cependant, l'expression de Wang et al. (2007), bien que discutable d'un point de vue fondamental car établie en considérant que toutes les particules ne sont piégées que par diffusion brownienne, donne également des résultats satisfaisants (figure IV-7). Cela suppose néanmoins, dans le cas des médias synthétiques, que les forces coulombiennes ne soient pas prépondérantes dans la capture des particules chargées (figure IV-18). A titre d'exemple, nous avons pu voir que la diminution de la perméance obtenue au-dessus de 20 nm pour le R2033 imaginé en ETFE ne saurait être prédite par le modèle $0{,}84\ Pe^{-0{,}43}$, alors que les valeurs calculées pour le Reemay tel qu'il est commercialé ($\lambda = 3{,}37 \times 10^{-12}$ C.m^{-1}) restent correctes.

5. Perméance au sein de médias percés

L'efficacité de filtration des médias vis-à-vis des nanoparticules, chargées ou non, augmente donc lorsque le diamètre de l'aérosol diminue. Aux modèles d'efficacité près, ceci concorde avec la majorité des travaux répertoriés au chapitre I (tableaux I-5 et I-6). L'ensemble de ces études a été mené avec des filtres visiblement intacts, autrement dit sans défaut apparent telle qu'une micro-perforation par exemple. Il est pourtant reconnu que les performances d'un filtre peuvent être fortement modifiées en cas de fuite, ce qui justifie d'ailleurs leur détection le plus tôt possible, souvent dès le processus de fabrication. Si des recherches ont été réalisées sur le fonctionnement en mode dégradé des médias dans les domaines microniques et submicroniques [Hinds et Kraske (1987), Hinds et Bellin (1987), Chen et al. (1990), Weber et al. (1993), Vaughan et al. (1994)], très peu en revanche ont été entreprises dans le domaine ultrafin, à l'exception peut-être des travaux de Liu et al. (1993). Nous nous sommes donc intéressés à l'impact d'une perforation variant entre 400 µm et 2 mm sur les performances des filtres A320, AX1923 et D309 en dessous de 30 nm. Les médias ont été percés une fois, en leur milieu, à l'aide d'aiguilles parfaitement calibrées.

5.1. Modélisation

Un modèle d'efficacité de filtration qui inclut l'effet d'une fuite au sein du média peut être développé en différenciant le flux d'aérosol Q_h passant par la perforation du flux Q_b traversant le matelas de fibres résiduel du filtre (les indices h et b sont pour hole et bed respectivement) [figure IV-26)].

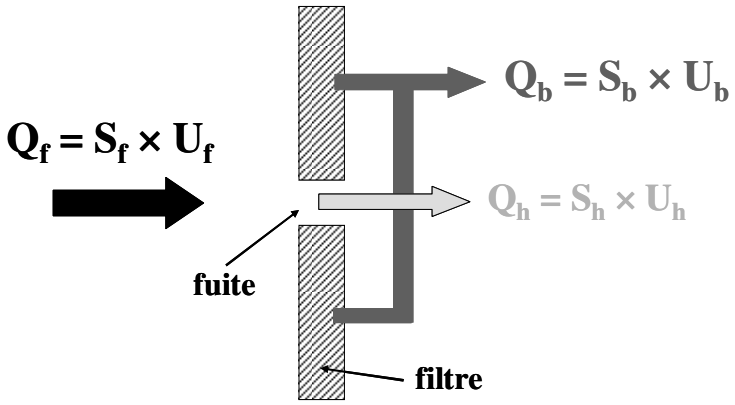


Figure IV-26 : Représentation schématique d'un filtre percé et notations

A partir d'un bilan-matière entre l'entrée et la sortie du filtre, il est possible d'écrire :

$$P_f = \frac{Q_b}{Q_f} P_b + \frac{Q_h}{Q_f} P_h = 1 - E_f \qquad \text{(IV-20)}$$

où P_f désigne la perméance totale du filtre percé, et P_b et P_h les perméances respectives du matelas de fibres et de la perforation. Q_f est le débit d'aérosol total traversant le filtre, et est égal à la somme de Q_b et Q_h. E_f est l'efficacité globale du filtre. L'indice additionnel 0 sera

parfois utilisé par la suite pour distinguer les valeurs du filtre non-percé. Notons par exemple dès à présent qu'en l'absence de fuite :

$$P_{f,0} = P_{b,0} \tag{IV-21}$$

Selon l'équation (IV-20) et les valeurs respectives de $Q_b \times P_b$ et $Q_h \times P_h$, la perméance totale P_f du filtre percé va être conditionnée soit par le matelas de fibres restant, soit par la perforation, voire les deux dans un cas intermédiaire. En effet, si le paramètre φ, défini comme le rapport entre les deux produits mentionnés ci-avant, est petit (inférieur à 0,1, autrement dit $Q_b \times P_b >> Q_h \times P_h$), l'influence de la fuite sera négligeable et le média fonctionnera alors en régime de lit. Au contraire, si φ est très grand (supérieur à 10), la perméance P_f sera gouvernée par la fuite ; on parlera de régime de fuite.

$$\varphi = \frac{Q_h P_h}{Q_b P_b} = \Phi_Q \times \Phi_P \tag{IV-22}$$

avec

$$\Phi_Q = \frac{Q_h}{Q_b} \tag{IV-23}$$

et

$$\Phi_P = \frac{P_h}{P_b} \tag{IV-24}$$

Ainsi, à partir de (IV-20) :

$$P_f = (1 + \varphi)\frac{Q_b}{Q_f} P_b = \frac{(1+\varphi)}{(1+\Phi_Q)} P_b \tag{IV-25}$$

Il est donc nécessaire d'estimer Q_b et Q_h. Ceci peut être fait à partir de la mesure de la perte de charge des médias percés et non-percés. Celle des trois filtres intacts $\Delta P_{f,0}$ en fonction de U_f a été présentée précédemment (figure IV-2). En régime d'écoulement laminaire, la loi de Davies donne :

$$\Delta P_{f,0} = K\, \mu_g\, U_f = K\, \mu_g \frac{Q_f}{S_f} \tag{IV-26}$$

avec K, la résistance à l'écoulement, s'exprimant en m^{-1} (tableau IV-3), pour une section S_f de filtre égale à $2{,}83 \times 10^{-3}$ m^2 (60 mm de diamètre). La perte de charge des médias percés ΔP_f, qui varie selon le diamètre d_h de la perforation, peut ensuite s'écrire :

$$\Delta P_f = \Delta P_b = \Delta P_h \tag{IV-27}$$

avec

$$\Delta P_b = K\, \mu_g \frac{Q_b}{S_b} = K\, \mu_g\, U_b \tag{IV-28}$$

Or, comme nous avons pu l'observer expérimentalement, ΔP_f est également proportionnelle à la vitesse de filtration U_f, selon un facteur $\mu_g \times K'$:

$$\Delta P_f = K'\, \mu_g\, U_f = K'\, \mu_g \frac{Q_f}{S_f} \tag{IV-29}$$

Les valeurs de K' sont listées dans le tableau IV-3. Afin d'être aussi précis que possible sur K', ces derniers n'ont pas été calculés à partir de la pente de la droite ΔP_f en fonction de U_f (perméation), mais à partir de la valeur de ΔP_f mesurée la plus grande (à l'aide d'un manomètre incliné à eau, d'une précision de 0,1 mm), autrement dit à la vitesse de filtration elle aussi la plus grande. En effet, la différence de perte de charge entre filtre intact et filtre percé est si peu importante qu'à faible vitesse, les valeurs obtenues sont confondues. Il est donc nécessaire de travailler à U_f aussi grande que possible pour pouvoir commencer à distinguer sensiblement ΔP_f et $\Delta P_{f,0}$. Malgré cela, la différence entre ces deux valeurs reste faible, et l'incertitude sur K' relativement élevée.

Tableau IV-3 : Valeurs des résistances à l'écoulement K et K'

		K et K' ($\times 10^5$ cm^{-1}) $\pm 3 \times 10^3$		
diamètre de la fuite d_h (mm)	**S_h / S_f**	**A320**	**AX1923**	**D309**
0 (K = K')	-	1,57	4,24	35,41
0,40	$4,44 \times 10^{-5}$	-	4,22	35,28
1,32	$4,84 \times 10^{-4}$	1,55	4,18	33,22
2,00	$1,11 \times 10^{-3}$	1,52	3,96	-

En égalisant (IV-28) et (IV-29), il vient :

$$Q_b = \frac{S_b K'}{S_f K} Q_f = \left(1 - \frac{S_h}{S_f}\right) \frac{K'}{K} Q_f \qquad \text{(IV-30)}$$

Comme Q_f est la somme de Q_h et Q_b:

$$Q_h = \left(1 - \frac{S_b K'}{S_f K}\right) Q_f \qquad \text{(IV-31)}$$

et

$$\Phi_Q = \left(\frac{S_f K}{S_b K'} - 1\right) \qquad \text{(IV-32)}$$

La figure IV-27 représente l'évolution du pourcentage de débit de fuite (ratio entre Q_h et Q_f) et le rapport entre la vitesse de l'aérosol au sein du matelas fibreux U_b et la vitesse globale U_f, égal à K' sur K, en fonction du diamètre de la perforation d_h pour le filtre Lydall AX1923.

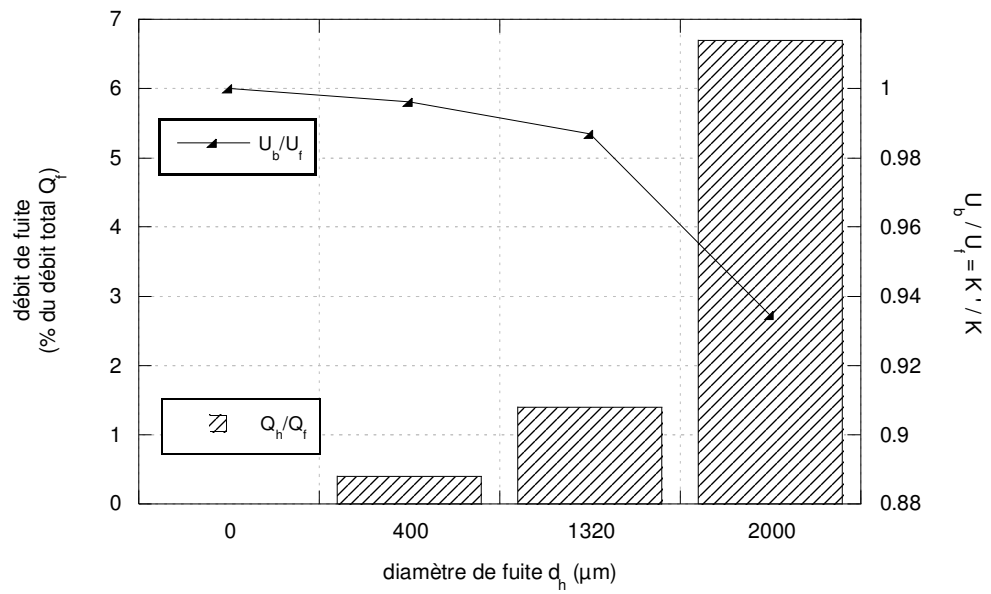


Figure IV-27 : Pourcentage de débit de fuite et ratio U_b/U_f selon le diamètre de fuite d_h pour le filtre AX1923

En toute logique, le débit de fuite augmente lorsque d_h augmente. Par conséquent, la vitesse U_b à laquelle l'air traverse le lit de fibres diminue et son écart par rapport à U_f augmente au fur et à mesure que d_h est plus grand (le rapport K'/K diminue). Cette différence de vitesse effective de filtration entre média intact et média percé doit être pris en compte dans le calcul de la perméance P_b. En d'autres termes, P_b n'est pas égal à $P_{f,0}$.

$$P_b = \exp\left(-\frac{4\,\alpha\,Z}{\pi\,(1-\alpha)\,d_f}\,\eta_b\right) = 1 - E_b \qquad \text{(IV-33)}$$

avec η_b, l'efficacité unitaire de collecte des fibres du matelas fibreux à la vitesse U_b. L'expression (IV-20) peut donc se réécrire :

$$P_f = \frac{S_b\,K'}{S_f\,K}\,\exp\left(-\frac{4\,\alpha\,Z}{\pi\,(1-\alpha)\,d_f}\,\eta_b\right) + \left(1 - \frac{S_b\,K'}{S_f\,K}\right)P_h \qquad \text{(IV-34)}$$

ou, à partir de l'équation (IV-25) :

$$P_f = (1+\varphi)\,\frac{S_b\,K'}{S_f\,K}\,\exp\left(-\frac{4\,\alpha\,Z}{\pi\,(1-\alpha)\,d_f}\,\eta_b\right) \qquad \text{(IV-35)}$$

Si l'on suppose à présent que la perméance au sein de la perforation P_h est totale quels que soient le diamètre de particules d_p ou le débit de fuite Q_h :

$$P_h = 1 \qquad \text{(IV-36)}$$

De plus, comme nous l'avons vu dans la partie 3, l'expression 0,84 $Pe^{-0,43}$ de Wang et al. (2007) permet, malgré la façon dont elle a été établie, de modéliser correctement, et de façon simple, l'efficacité unitaire de collecte pour des aérosols ultrafins globalement neutres (figure IV-7). Aussi :

$$\eta_b = 0,84\ Pe_b^{-0,43} \tag{IV-37}$$

avec

$$Pe_b = \frac{d_f\, U_b}{D} = \frac{d_f\, Q_b}{D\, S_b} = \frac{K'}{K} Pe_f \tag{IV-38}$$

La perméance P_b d'un aérosol globalement neutre au travers du matelas fibreux du filtre percé peut donc s'écrire :

$$P_b = \exp\left[-\frac{3,36\,\alpha\, Z}{\pi\,(1-\alpha)\,d_f}\left(\frac{K'}{K}\ Pe_f\right)^{-0,43}\right] \tag{IV-39}$$

Enfin, l'incorporation de (IV-36) et (IV-39) dans (IV-22) et (IV-34) donne :

$$\varphi = \left(\frac{S_f\, K}{S_b\, K'} - 1\right)\exp\left[\frac{3,36\,\alpha\, Z}{\pi\,(1-\alpha)\,d_f}\left(\frac{K'}{K} Pe_f\right)^{-0,43}\right] \tag{IV-40}$$

et

$$P_f = 1 - \frac{S_b\, K'}{S_f\, K}\left(1 - \exp\left[-\frac{3,36\,\alpha\, Z}{\pi\,(1-\alpha)\,d_f}\left(\frac{K'}{K}\ Pe_f\right)^{-0,43}\right]\right) \tag{IV-41}$$

Il est intéressant de remarquer que dans le domaine ultrafin, et selon les hypothèses émises, les expressions respectives des perméances au travers d'un filtre intact et percé ne sont pas si éloignées l'une de l'autre analytiquement. En effet, si l'on reprend (IV-20), la perméance $P_{f,0}$ au travers d'un filtre intact s'écrit :

$$P_{f,0} = 1 - E_{f,0}\,(Pe_f) \tag{IV-42}$$

avec l'efficacité $E_{f,0}$ du filtre, fonction du nombre de Péclet Pe_f, tandis que pour le filtre percé, l'expression (IV-42) apparaît en fait simplement corrigée par deux termes A_1 et A_2 :

$$P_f = 1 - A_1\, E_{f,0}\,(A_2\, Pe_f) \tag{IV-43}$$

avec

$$A_1 = \frac{S_b\, K'}{S_f\, K} = \frac{Q_b}{Q_f} = \frac{1}{1+\Phi_Q} \tag{IV-44}$$

et

$$A_2 = \frac{K'}{K} = \frac{U_b}{U_f} \tag{IV-45}$$

L'expression (IV-45) se résumera à (IV-44) en l'absence de fuites, puisque dans ce cas $\Phi_Q = 0$ et $U_b = U_f$.

5.2. Résultats expérimentaux

Les figures IV-28 et IV-29 présentent l'effet de différents trous calibrés percés au sein des filtres A320 et AX1923 sur la perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers de ces derniers. Les parties gauches des figures correspondent à une vitesse de filtration de 5 cm.s^{-1}, et les parties droites, à 15 cm.s^{-1}.

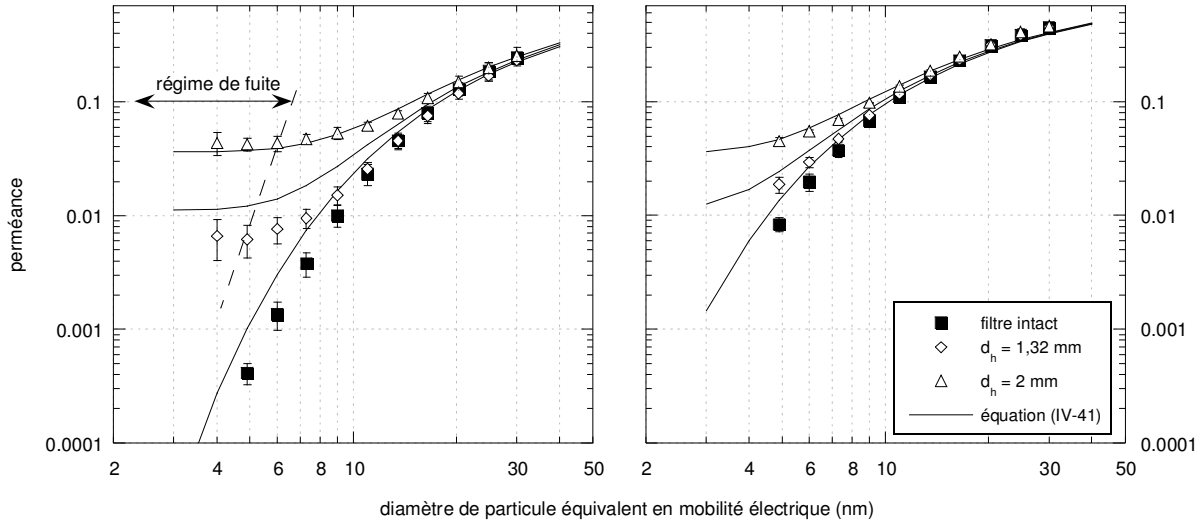


Figure IV-28 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre A320 intact et percé selon deux diamètres de perforation différents (à gauche : U_f = 5 cm.s^{-1} ; à droite : U_f = 15 cm.s^{-1})

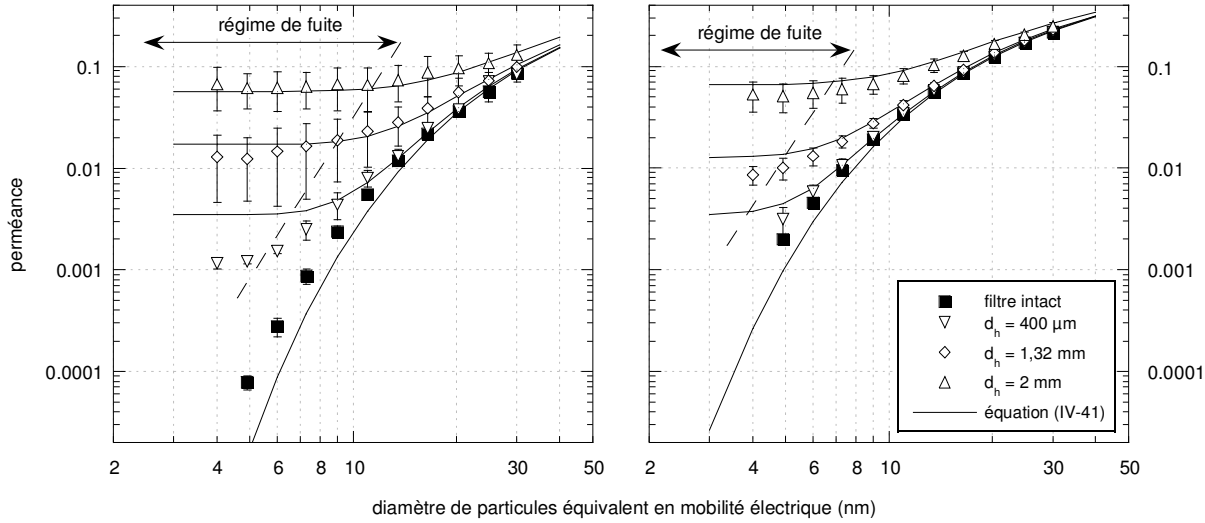


Figure IV-29 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre AX1923 intact et percé selon trois diamètres de perforation différents (à gauche : U_f = 5 cm.s^{-1} ; à droite : U_f = 15 cm.s^{-1})

L'accord entre notre modèle [équation (IV-41)] et les valeurs expérimentales est excellent. Comme on pouvait s'y attendre, l'efficacité d'un filtre diminue lorsque celui-ci est endommagé (percé), et ce d'autant plus fortement que le diamètre de la fuite augmente. Il est à noter cependant que l'augmentation de perméance observée est proportionnellement plus

importante pour les particules les plus fines, même pour de petites perforations. Par exemple, la perméance des particules de 20 nm au travers du Lydall AX1923 à 5 cm.s^{-1} est quasiment inchangée lorsque celui-ci est percé d'un trou de 400 µm, et P_f n'augmente notablement pour ce diamètre de particules qu'à partir d'une perforation supérieure à 1,32 mm. En revanche, lorsqu'il est percé d'un trou de 400 µm, ce média est 10 fois plus perméant vis-à-vis d'un aérosol de 6 nm que lorsqu'il est non-percé. Outre l'efficacité moindre constatée, ce comportement différent d'une taille de particules à l'autre peut avoir de lourdes conséquences sur la distribution granulométrique en aval de média. En effet, l'aérosol en sortie de filtre percé sera relativement plus fin que celui en sortie de filtre intact. Un média percé pourrait alors ne plus répondre aux exigences de filtration requises, non pas en termes de concentration totale (qui peut rester en-dessous des limites fixées), mais en termes de diamètre moyen acceptable en sortie de filtre (si la toxicité des particules qui doivent être arrêtées est fonction de leur taille par exemple, comme cela pourrait être le cas pour le TiO_2 nanométrique [voir Donaldson et al. (2001)]).

Il peut être remarqué figure IV-29 que pour l'AX1923 avec une fuite de 400 µm de diamètre, l'accord entre les valeurs de perméance mesurées à 5 cm.s^{-1} et le modèle développé est légèrement moins bon que pour les autres conditions opératoires, en particulier pour les particules les plus fines (d_p < 8 nm). Deux explications peuvent être avancées. La première est l'incertitude relative sur K', qui est d'autant plus grande que K' est proche de K, puisque, comme expliqué plus haut, la différence entre ΔP_f et $\Delta P_{f,0}$ est alors extrêmement faible. La seconde raison est que l'hypothèse de perméance totale au travers de la fuite [équation (IV-36)] devient de moins en moins valable au fur et à mesure que d_h diminue. En effet, dans le cas des très petites perforations, une partie des particules du flux Q_h risque d'être collectée.

Enfin, on peut observer figures IV-28 et IV-29 qu'en-dessous d'un certain diamètre de particules, dépendant de la taille de la perforation, la perméance tend vers une valeur constante, ce que prédit bien notre modèle. P_f n'est alors plus conditionnée par la capture au sein du matelas de fibres, mais par la fuite : c'est ce que nous appelons le régime de fuite. Ce régime semble atteint dès la plus petite perforation, y compris pour les « grosses » particules (entre 20 et 30 nm), dans le cas du filtre D309 (figure IV-30) :

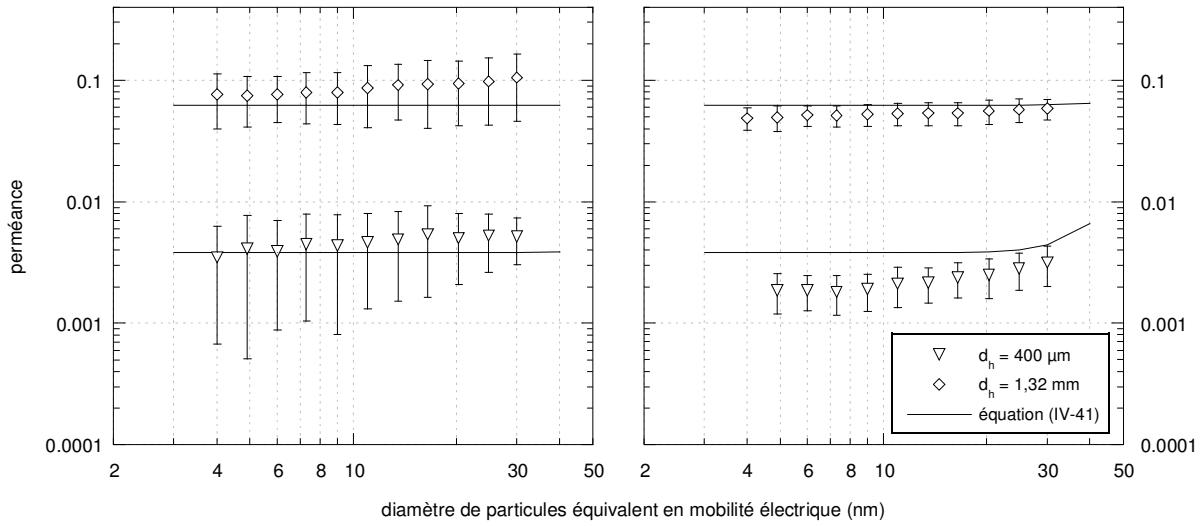


Figure IV-30 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre D309 percé selon deux diamètres de perforation différents (à gauche : U_f = 5 cm.s^{-1} ; à droite : U_f = 15 cm.s^{-1})

Pour rappel, aucune perméance n'a pu être mesurée pour le D309 intact, en raison de sa très grande efficacité (figure IV-9). De fait, la moindre perforation augmente considérablement la perméance des particules au sein de ce média. D'un point de vue mathématique, le terme exponentiel de l'expression (IV-41) est négligeable devant 1, et P_f tend donc vers la constante $\Phi_Q/(\Phi_Q+1)$. Cette valeur est par ailleurs indépendante de la vitesse de filtration U_f, ce qui apparaît bien figure IV-30.

Pour un même diamètre de fuite d_h, et pour une même vitesse de filtration U_f, les perméances mesurées pour chacun des trois médias sont comparées figure IV-31.

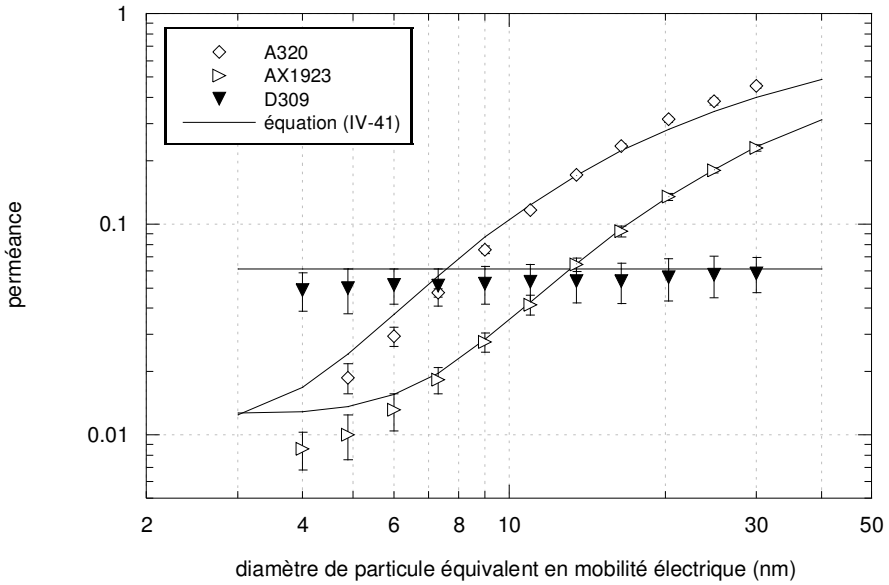


Figure IV-31 : Comparaison de la perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers de chacun des trois filtres testés (perforation de 1,32 mm et U_f = 15 cm.s^{-1})

Alors que le D309 est le plus efficace des trois filtres lorsqu'ils sont intacts, à 15 cm.s^{-1}, il s'avère plus perméant que l'AX1923 et l'A320, respectivement en-dessous de 13 et 7 nm, lorsqu'ils sont percés d'un trou de 1,32 mm. Ceci peut s'expliquer par le fait que le média D309 a une résistance à l'écoulement K plus grande que les deux autres filtres. Or, pour un débit total Q_f donné, le pourcentage de fuite sera d'autant plus important (Q_h grand), pour une même perforation, que K est grand. Comme on peut le voir à partir du tableau IV-3, le rapport K'/K diminue plus vite lorsque d_h augmente pour le D309 que pour le filtre Lydall ou l'A320. La perte de charge due aux fibres de ces derniers étant moins importante, une même fuite laisse passer moins de particules au travers du média.
Ces observations posent la question du choix de média pour le domaine ultrafin. D'un point de vue hygiène et sécurité, pour la confection de masques par exemple, il est évident que le média le plus efficace s'impose afin d'assurer le plus haut niveau de protection possible. Pour le confinement d'installations en revanche, le choix d'un média initialement moins efficace à l'état intact mais moins perméant en cas de dysfonctionnement (fuite) pourrait être judicieux. Supposons par exemple qu'en réponse à une norme environnementale, l'objectif soit d'obtenir à l'aval du filtre un rejet en particules de 4 nm inférieur à 100 particules par cm^3, l'aérosol à traiter en contenant 10^4. Non-percés, D309 et AX1923 répondent parfaitement à cet objectif, le premier davantage encore que le second. Par contre, si ces filtres subissent une perforation (ou un déchirement) de l'ordre de 1,3 mm, le D309 n'assure plus le niveau d'efficacité pour

lequel il pourrait avoir été retenu ($C_{aval} \approx 500$ particules.cm^{-3}), tandis que le Lydall l'atteint toujours. Ce dernier apparaît donc comme un choix plus pertinent (et plus « économique, la perte de charge étant moindre), puisqu'il permet d'avoir une marge de sécurité, que l'on pourrait qualifier de passive, supplémentaire. D'un point de vue « dimensionnement », pouvoir estimer le comportement d'un média en mode dégradé peut donc s'avérer particulièrement intéressant, et est possible grâce à l'équation (IV-41).

Les figures IV-32 et IV-33 représentent enfin l'évolution de la perméance d'un aérosol globalement neutre de 6 nm au travers de filtres A320 et AX1923 intacts et perforés en fonction de la vitesse globale de filtration U_f.

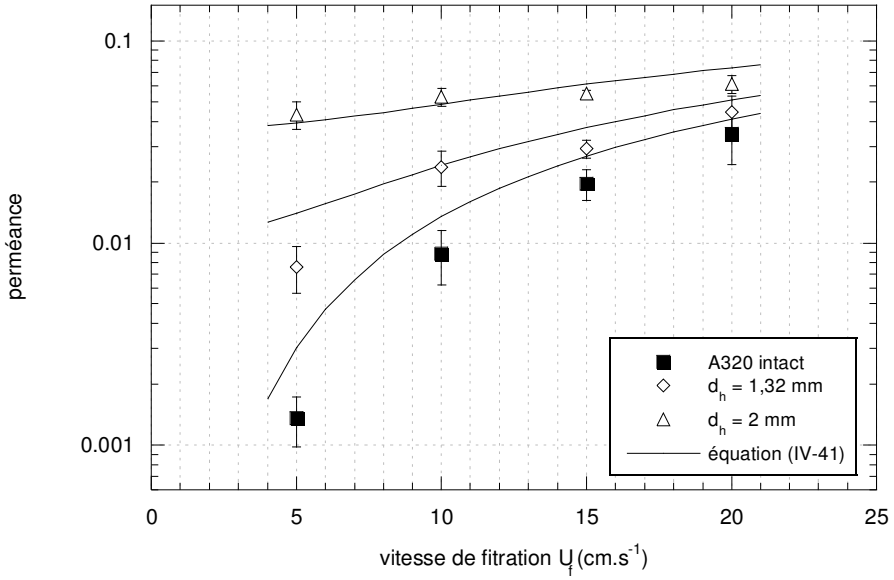


Figure IV-32 : Perméance d'un aérosol de cuivre globalement neutre de 6 nm au travers du filtre A320 en fonction de la vitesse de filtration U_f et du diamètre de la perforation réalisée au sein du média

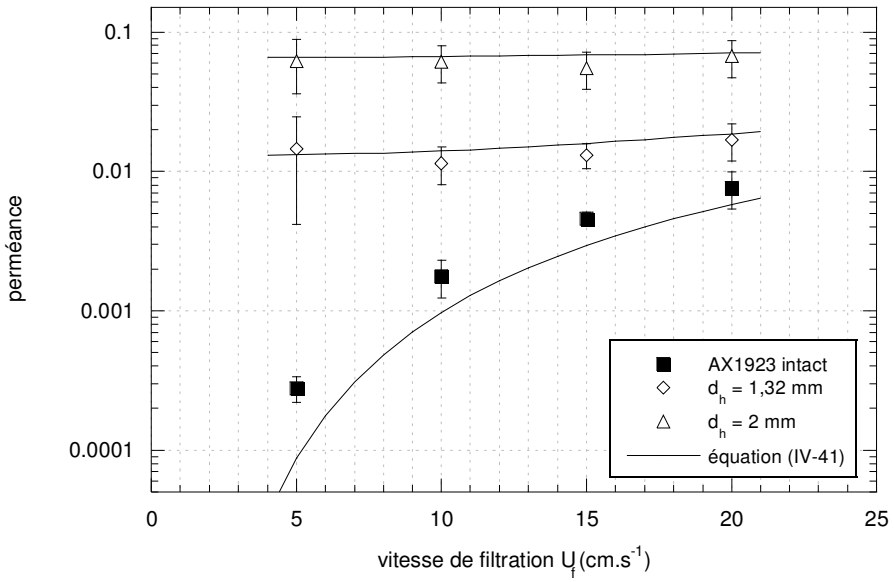


Figure IV-33 : Perméance d'un aérosol de cuivre globalement neutre de 6 nm au travers du filtre AX1923 en fonction de la vitesse de filtration U_f et du diamètre de la perforation réalisée au sein du média

Pour une taille de particules donnée, la perméance au travers d'un filtre non-percé augmente lorsque la vitesse de filtration augmente. Ceci est un résultat bien connu, vérifié précédemment (figure IV-6 par exemple), dû à la diminution de l'efficacité unitaire de fibres lorsque le nombre de Péclet augmente : toute chose étant par ailleurs égale, Pe augmente lorsque U_f augmente. En revanche, P_f devient progressivement indépendante de U_f au fur et à mesure que le diamètre de la perforation d_h est plus grand. Ceci confirme qu'en régime de fuite, la perméance des particules n'est plus influencée par la vitesse de l'aérosol : P_f tend vers $\Phi_Q/(\Phi_Q+1)$. Par conséquent, l'écart entre $P_{f,0}$ et P_f diminue lorsque U_f augmente. En quelque sorte, l'impact d'une fuite au sein d'un média est réduit à grande vitesse.

5.3. Régime de lit et régime de fuite

Comme nous l'avons vu lors du développement de notre modèle, le paramètre permettant de prévoir dans quel régime un filtre percé arrêtera les particules (régime de fuite, de lit ou intermédiaire) est le nombre φ [équation (IV-22) ou (IV-40)]. Ce terme adimensionnel peut être déterminé à partir des deux paramètres Φ_Q [équation (IV-23)] et Φ_P [équation (IV-24)] qui, pour un média donné, dépendent uniquement de K' et d_h. La connaissance de ces deux grandeurs, et des caractéristiques physiques du filtre (tableau IV-1), suffit donc à en prévoir le comportement général (figure IV-34). Dans cette étude et compte tenu des trois médias testés, Φ_Q et Φ_P varient respectivement de 0 à 0,07 et de 2 à plusieurs puissances de dix :

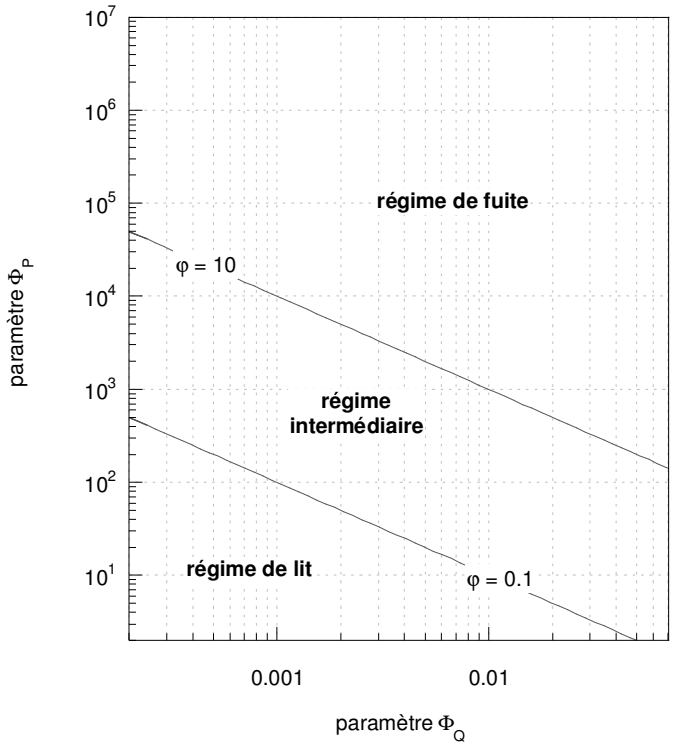


Figure IV-34 : Cartographie des régimes de filtration d'un média percé

Quand le diamètre de la fuite augmente, Φ_Q et Φ_P augmentent : le point opératoire (PO) représentant le filtre considéré sur la figure IV-34 va se déplacer du régime de lit vers le régime de fuite, ce qui concorde avec les figures IV-28 et IV-29. Quand la vitesse de filtration U_f augmente, Φ_P diminue, mais Φ_Q reste inchangé. Le PO se déplace alors selon une verticale,

du bas vers le haut. Enfin, quand le diamètre de l'aérosol d_p diminue, Φ_Q est constant tandis que Φ_P augmente, ce qui confirme que la perméance des petites particules est davantage influencée par une fuite que celle des particules plus grosses. Les dépendances de Φ_P et Φ_Q en fonction des différents paramètres énoncés ci-dessus sont récapitulées tableau IV-4.

Tableau IV-4 : Evolution de Φ_Q et Φ_P en fonction de d_h, U_f et d_p

			Φ_Q	Φ_P	P_f
Si	d_h	**augmente :**	+	+	+
	U_f		=	−	+
	d_p		=	+	+

− : diminue, + : augmente et = : est inchangé

Afin d'illustrer le comportement propre à chacun des trois médias testés sous des conditions opératoires identiques, les figures IV-35 et IV-36, à rapprocher de la figure IV-31, montrent respectivement l'évolution de φ pour une perforation de 1,32 mm et une vitesse de filtration de 15 cm.s^{-1}, et l'évolution des points opératoires correspondants sur la figure IV-34.

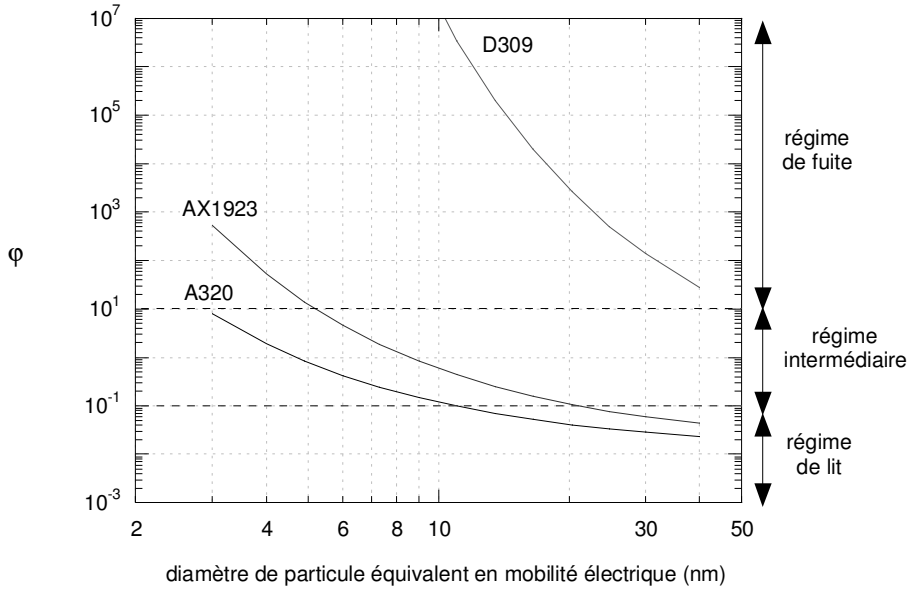


Figure IV-35 : Evolution du paramètre adimensionnel φ en fonction du diamètre de particules d_p pour chacun des trois filtres à fibres testés, percés d'un trou de 1,32 mm, à 15 cm.s^{-1}

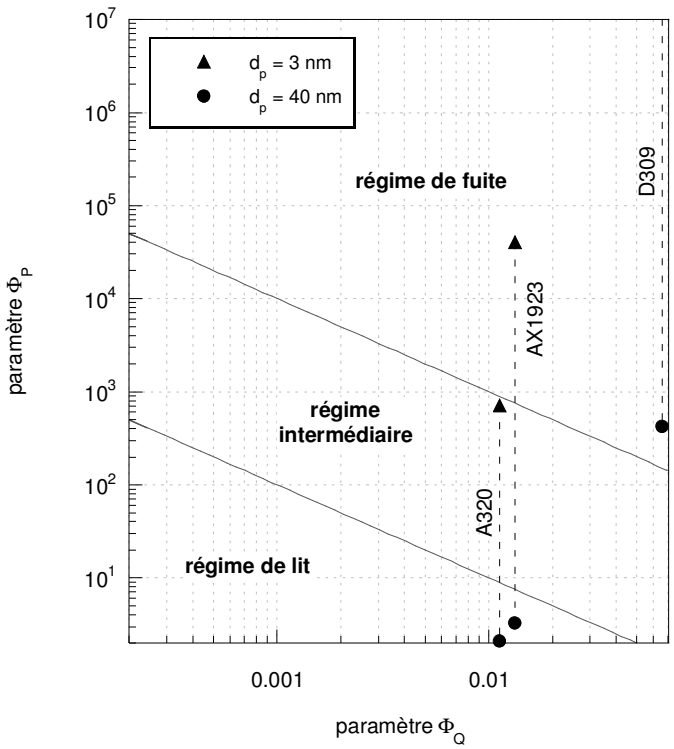


Figure IV-36 : Evolution des points opératoires des trois filtres sur la cartographie des régimes (d_h = 1,32 mm, U_f = 15 cm.s^{-1})

Entre 3 et 40 nm, et à 15 cm.s^{-1}, le D309 perforé est toujours en régime de fuite. En revanche, l'A320 reste en-dessous de la limite $\varphi = 10$, et ne va pas au-delà du régime intermédiaire. Le point opératoire de l'AX1923 quant à lui traverse les trois zones de la carte, du régime de lit pour les plus grosses particules au régime de fuite pour les plus fines.

En conclusion, nous avons pu voir qu'une fuite, même petite (400 µm), peut avoir des conséquences spectaculaires sur l'efficacité de filtration d'un média fibreux vis-à-vis des nanoparticules. Or, elle n'a que très peu d'impact sur la perte de charge ΔP_f de ce média. Aussi, en cas d'utilisation de méthode indirecte de détection de fuite basée sur la mesure de la perte de charge, et en cas de sensibilité insuffisante, le filtre utilisé peut ne plus répondre aux exigences de filtration requises sans que cela soit décelé. Le fait que la perméance des particules les plus fines, pour une même perforation, augmente d'autant plus, par rapport à $P_{f,0}$, que la résistance à l'écoulement du média K est grande, peut aussi remettre en cause l'utilisation de filtres à très haute efficacité dans le domaine ultrafin. Ainsi, mieux vaudra parfois choisir un filtre moins résistant, mais suffisamment efficace cependant pour l'application envisagée (respect de normes de rejet par exemple), les conséquences en cas de fuite étant moins importantes (voire assez restreintes pour conserver un niveau d'efficacité acceptable, en attendant le remplacement du filtre). Pour aider dans ce choix, notre modèle de prédiction, développé en différenciant les débits de fuite et d'aérosol effectivement filtré, permet d'estimer de façon efficace et relativement simple la perméance d'un média perforé, connaissant ses propriétés physiques et sa résistance à l'écoulement équivalente K' vis-à-vis de la taille de fuite considérée.

Chapitre V
-
Efficacité des Lits Granulaires

1. Présentation des médias

Outre les grilles et les filtres non-tissés, un troisième type de média parfois utilisé en filtration est le lit granulaire. Afin de valider les expressions théoriques données dans la littérature pour l'efficacité de filtration de ces lits granulaires dans le domaine ultrafin (partie 2 de ce chapitre), nous avons mesuré la perméance aux travers de billes en acier parfaitement pleines, lisses et calibrées (billes de roulement). Quatre diamètres de billes d_b différents ont été testés : 6,35 ; 4,76 ; 3,50 et 2,38 mm. Pour ce faire, les deux porte-filtres de 60 mm de diamètre symbolisés figure II-1 (annexe I) ont été remplacés par deux cartouches cylindriques en acier inox de 14 cm de longueur, pour un diamètre intérieur de 40 mm. L'une de ces deux cartouches était ensuite remplie de billes, retenues à chaque extrémité du cylindre, une fois en position horizontale, par une grille inox 355 (choisie pour sa faible efficacité vis-à-vis des nanoparticules, afin de ne pas en « perdre » inutilement). Afin de conserver la symétrie de la double-conduite du banc d'essai, la cartouche vide était elle aussi équipée de deux grilles inox 355. Le protocole expérimental est quant à lui resté le même (vérification du rapport Γ, au moins 3 séries de mesures pour chaque condition opératoire testée, etc...), au débit d'air de dilution Q_{air} en sortie de DMA près (afin de conserver une vitesse en fût vide de 5 ou 15 $cm.s^{-1}$, la section de passage étant plus petite qu'avec les filtres à fibres).

2. Efficacité théorique d'un lit de billes dans le domaine diffusionnel

A partir d'un bilan matière analogue à celui réalisé dans le cas d'un filtre à fibres (chapitre I), l'efficacité E et la perméance P d'un lit de billes peuvent s'écrire :

$$P = \exp\left(-\frac{3}{2}\eta\left(1-\varepsilon_b\right)\frac{L_b}{d_b}\right) = 1 - E \qquad \text{(V-1)}$$

η est toujours définie comme l'efficacité unitaire de collecte des particules, et dépend des mécanismes intervenant dans la capture de l'aérosol. L_b désigne la longueur du lit de billes, dans notre cas 14 cm.
Comme pour les filtres à fibres, différentes expressions ont été proposées pour η dans le domaine diffusionnel (alors noté η_d). Le tableau V-1 en liste les principales. On retrouve une nouvelle fois le nombre de Péclet à la puissance −2/3. Celui-ci est ici défini de la manière suivante :

$$Pe = \frac{d_b U}{D} \qquad \text{(V-2)}$$

la dimension caractéristique du système d_b remplaçant celle des filtres d_f [équation (I-16)].
Le nombre de Reynolds Re s'exprime quant à lui :

$$Re = \frac{\rho_g U d_b}{\mu_g} \qquad \text{(V-3)}$$

Tableau V-1 : Expressions de l'efficacité unitaire de collecte par diffusion selon différents auteurs

Auteurs	Expression de η_d
Wilson et Geankopolis (1966)	$\frac{4{,}36}{\varepsilon_b}\,\mathrm{Pe}^{-2/3}$
Tan et al. (1975)	$\frac{4{,}40}{\varepsilon_b}\,\mathrm{Pe}^{-2/3}$
Tardos et al. (1976)	$4\left[1{,}07+3{,}43\left(1-\varepsilon_b\right)\right]\mathrm{Pe}^{-2/3}$
Gutfinger et Tardos (1979)	$\frac{5{,}24}{\varepsilon_b}\,\mathrm{Pe}^{-2/3}$
Mann et Goren (1984)	$3{,}97\left(4{,}19\,\varepsilon_b^{-2{,}41}+1{,}14\,\mathrm{Re}^{1/2}\varepsilon_b^{-3/2}\right)^{1/3}\mathrm{Pe}^{-2/3}$

La figure V-I représente l'efficacité unitaire de collecte par diffusion η_d selon les cinq expressions proposées par le tableau V-1, dans le cas théorique d'un lit de billes monodispersées de 4 mm de diamètre, pour un nombre de Reynolds de 25 (soit une vitesse de filtration d'environ 10 cm.s^{-1}). La porosité ε_b est prise égale à 0,38. Cette valeur correspond à celle déterminée par pesée pour chacun de nos lits expérimentaux de billes d'acier. En effet, connaissant la masse volumique des billes ($\rho_{acier} \approx 7700$ kg.m^{-3}), la masse apparente m_{app} du lit de billes nous a permis de calculer ε_b selon :

$$\varepsilon_b = 1 - \frac{4\,m_{app}}{\pi\,d_c^2\,L_b\,\rho_{acier}} \qquad \text{(V-4)}$$

avec d_c = 40 mm. Dans tous les cas, la porosité mesurée était proche de 0,38.

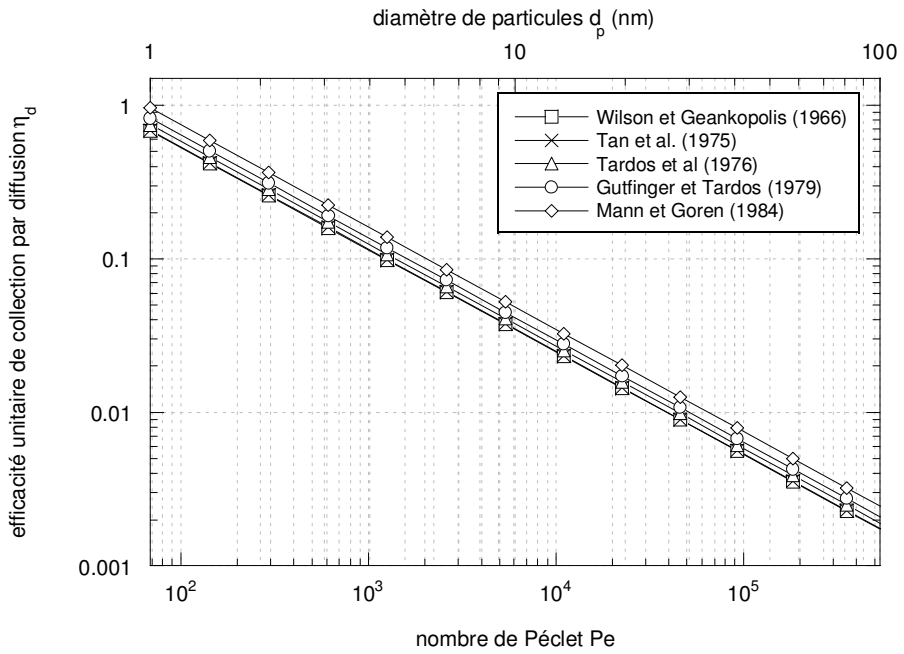


Figure V-1 : Efficacité unitaire de collecte η_d selon les différentes expressions du tableau V-1 en fonction du nombre de Péclet Pe ou du diamètre de particules d_p (Re = 25, U ≈ 10 cm.s^{-1})

η_d augmente lorsque Pe diminue, autrement dit, toute chose restant par ailleurs égale, lorsque le diamètre de particules d_p diminue. De plus, on peut voir que les valeurs calculées pour η_d varient peu d'un modèle à l'autre.

3. Capture des nanoparticules par des billes d'acier

La figure V-2 représente l'efficacité unitaire de collecte expérimentale η_{exp}, à 5 et 15 cm.s^{-1}, des quatre lits de billes d'acier testés vis-à-vis d'aérosols de cuivre inférieurs à 30 nm à l'équilibre de Boltzmann (globalement neutres). η_{exp} est calculée à partir de la perméance mesurée P_{exp} selon :

$$\eta_{exp} = \frac{2}{3}\frac{d_b}{(\varepsilon_b - 1)L_b}\ln P_{exp} \qquad \text{(V-5)}$$

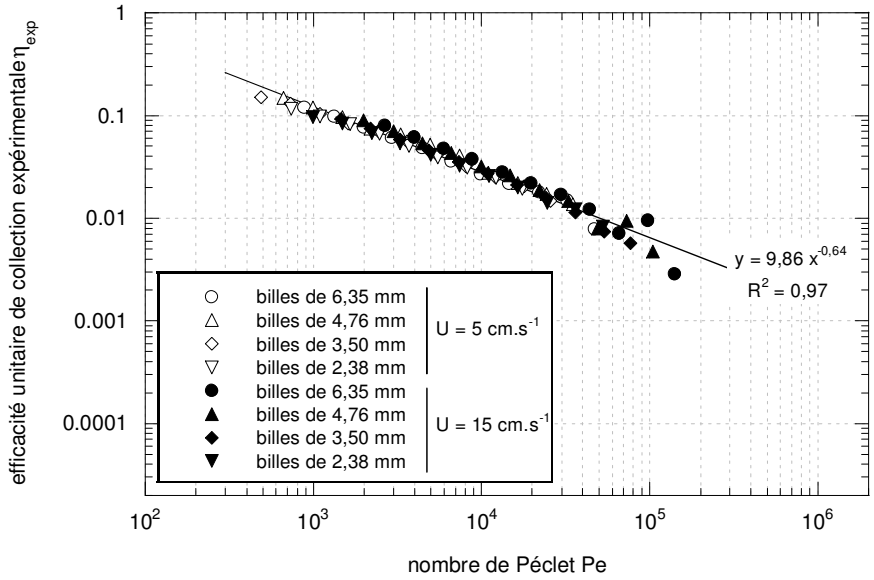


Figure V-2 : Efficacité unitaire de collecte expérimentale η_{exp} des lits de billes d'acier vis-à-vis d'aérosols de cuivre globalement neutres entre 3 et 40 nm, à 5 et 15 cm.s^{-1}

La courbe de tendance représentant au mieux nos points expérimentaux a pour équation :

$$\eta_{exp} = 9{,}86\ Pe^{-0{,}64} \qquad \text{(V-6)}$$

En amenant la puissance du nombre de Péclet à –2/3, afin d'obtenir une forme identique aux autres auteurs (tableau V-1), l'équation (V-6) devient :

$$\eta_{exp} = 11{,}43\ Pe^{-2/3} \qquad \text{(V-7)}$$

soit, compte tenu de la valeur 0,38 prise pour la porosité ε_b :

$$\eta_{exp} = \frac{4{,}34}{\varepsilon_b}\ Pe^{-2/3} \qquad \text{(V-8)}$$

L'expression (V-8) est pour ainsi dire identique à celle proposée par Wilson et Geankopolis (1966). Il nous semblerait exagéré, compte tenu de la très faible différence de constante placée devant le terme $Pe^{-2/3}/\varepsilon_b$, de présenter l'équation (V-8) comme un « nouveau modèle ». Nous conclurons donc que l'expression proposée par Wilson et Geankopolis (1966) est la plus appropriée (bien que l'une des moins récentes) pour représenter l'efficacité d'un lit de billes dans le domaine diffusionnel.

Nous avons pu voir au chapitre III que dans le cas des grilles métalliques, aucun mécanisme autre que la diffusion brownienne n'intervenait dans la collecte des particules nanométriques, et en particulier aucune force électrostatique de quelque nature que ce soit (force image ou coulombienne), même pour des aérosols chargés. Aussi, on peut raisonnablement supposer que cela reste vrai dans le cas de billes métalliques. Dès lors, bien que nous ayons travaillé expérimentalement avec des aérosols globalement neutres, et donc en partie composés de particules chargées, l'expression de Wilson et Geankopolis (1966) traduirait bien la composante diffusionnelle de l'efficacité de collecte des nanoparticules, et non une efficacité de collecte globale équivalente [cas en revanche, pour rappel, du modèle de Wang et al. (2007) pour les filtres non-tissés (voir chapitre IV)].

Les figures V-3 et V-4 représentent les valeurs de perméance mesurées au travers de nos lits de billes d'acier à 5 et 15 $cm.s^{-1}$ respectivement, pour des aérosols jusque 80 nm de diamètre, et les comparent aux valeurs théoriques calculées à partir de l'équation (V-8).

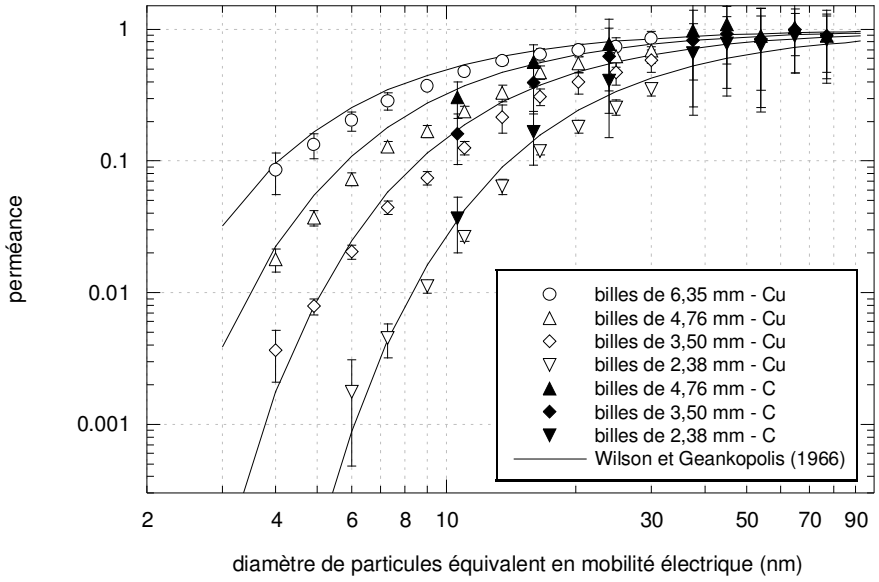


Figure V-3 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers des lits de billes d'acier, à 5 $cm.s^{-1}$

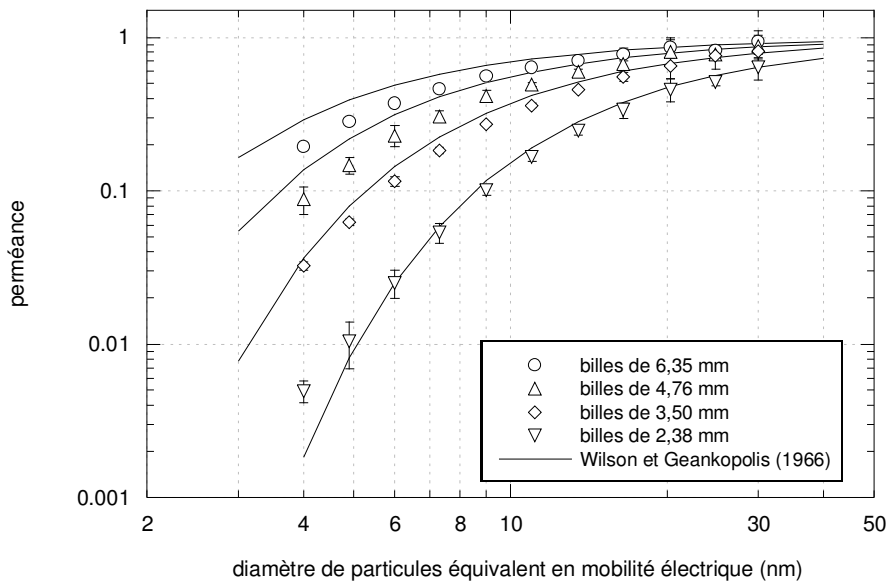


Figure V-4 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers des lits de billes d'acier, à 15 cm.s^{-1}

Conformément à la dépendance de η en fonction de Pe, plus les billes sont grosses, plus la perméance des particules au travers d'un lit est importante. Elle est également d'autant plus grande que la vitesse de l'aérosol est élevée. Enfin, plus la taille de l'aérosol diminue, plus le lit de billes se révèle efficace, quel que soit le diamètre des billes.

L'expression de Wilson et Geankopolis (1966) permet de représenter correctement les points obtenus, y compris pour des aérosols de carbone jusque 80 nm de diamètre. La nature chimique des particules ne semble donc pas, encore une fois, être un facteur déterminant. Au-dessus de 40 nm, la perméance est très proche de 1. Bien qu'elle soit parfaitement expliquée et modélisée à partir de l'équation (V-8), cette perméance quasi-totale des particules entre 40 et 90 nm reste « étonnante » ; les lits de billes faisant tout de même 14 cm de longueur (soit près de 2 millions de fois plus que le plus gros aérosol testé), on pourrait s'attendre à ce que les particules soient plus efficacement piégées [surtout en regard de l'efficacité d'une simple grille de 50 µm d'épaisseur par exemple (figure IV-4)].

4. Capture des nanoparticules par une zéolithe commerciale

Comme énoncé aux chapitres précédemment (chapitre III notamment), plus les particules sont petites, plus elles tendent à se comporter comme des molécules de gaz, en raison des chocs avec ces dernières à l'origine du mouvement brownien. Une solution courante de piégeage des gaz est l'emploi d'adsorbants, comme les zéolithes par exemple, également appelées tamis moléculaires [Yang (1997)]. Nous nous sommes donc intéressés, de façon exploratoire, à l'efficacité de collecte d'une zéolithe commerciale vis-à-vis des nanoparticules.

Afin de comparer les résultats de perméance obtenus avec ceux présentés ci-avant pour les billes d'acier, nous avons tout d'abord tamisé notre échantillon de billes de zéolithe (on parlera aussi de grains), et récolté ainsi deux tranches granulométriques différentes.

La première correspond à un diamètre de grains d_z compris entre 2,38 et 3,55 mm, et la seconde à $3{,}55 < d_z < 4{,}76$ mm. Les diamètres de grains inférieur et supérieur $d_{z,inf}$ et $d_{z,sup}$ correspondent ainsi aux diamètres des billes d'acier testées dans la partie 3.

Les figures V-5 et V-6 montrent les perméances mesurées pour ces deux tranches granulométriques à 5 et 15 cm.s^{-1}. Les aérosols-tests sont des aérosols globalement neutres. Les courbes théoriques calculées à partir de l'équation (V-8) pour $d_b = d_{z,inf}$ et $d_b = d_{z,sup}$ sont également représentées.

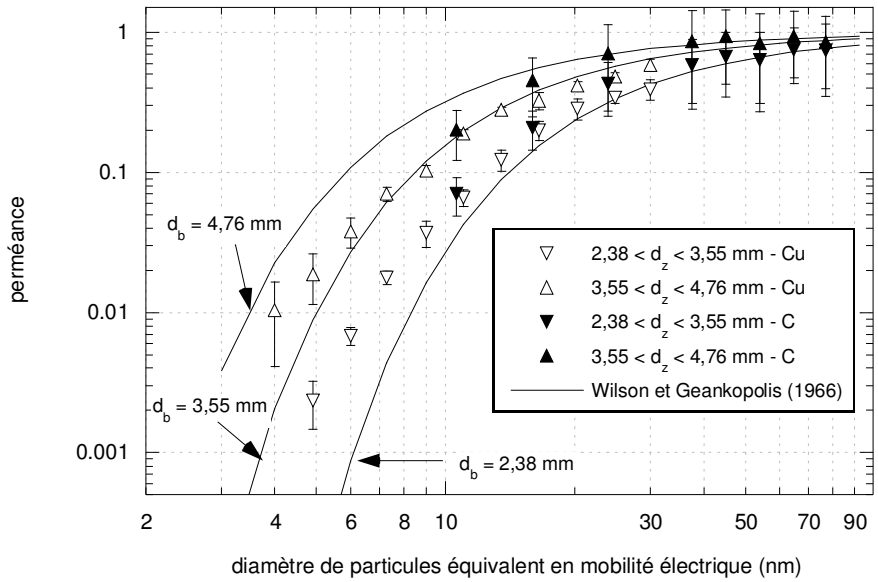


Figure V-5 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers des deux lits de zéolithe testés, à 5 cm.s^{-1}

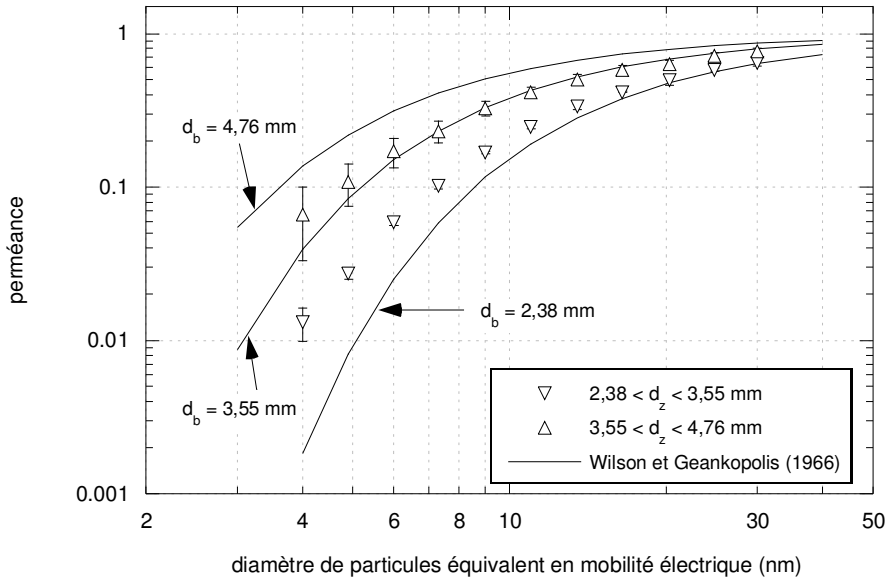


Figure V-6 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers des deux lits de zéolithe testés, à 15 cm.s^{-1}

Les points de perméance obtenus avec les lits d'adsorbant apparaissent globalement là où on pouvait les attendre, c'est-à-dire entre les courbes théoriques tracées. On pourra toutefois remarquer que la perméance des « gros grains » de zéolithe ($2,38 < d_z < 3,55$ mm) a tendance, pour des aérosols supérieurs à 8 nm, à être à la limite, voire en-dessous de la courbe $d_b = 3,55$ mm. Deux explications peuvent être proposées à ce phénomène. Tout d'abord, la population de grains de zéolithe n'étant pas parfaitement monodispersée, la porosité ε_b du lit est peut-être légèrement inférieure à 0,38, ce qui va avoir pour effet d'augmenter η et de diminuer P_{exp}. L'incidence devrait toutefois rester assez faible. L'autre possibilité est que des forces électrostatiques piègent, là encore, plus efficacement la fraction chargée de l'aérosol, ce qui tend à diminuer la perméance globale. La perméance d'aérosols composés uniquement de particules monochargées, positives ou négatives, n'ayant pas été testée, nous ne pouvons pas confirmer ou infirmer cette hypothèse.

En revanche, au vu des résultats obtenus pour les diamètres de particules les plus faibles, pour lesquels la fraction d'aérosol chargée est minime [pour rappel, celle-ci tend vers 0 lorsque d_p diminue (figure II-4)], nous pouvons raisonnablement penser que la porosité interne de la zéolithe ne participe pas, ou alors de façon mineure, à la capture des nanoparticules, les valeurs mesurées pour chacune des deux classes granulométriques étant alors nettement au-dessus des courbes $d_b = d_{z,inf}$.

En conclusion et au regard de cette première approche, les lits granulaires de zéolithe semblent se comporter d'un point de vue filtration des aérosols comme un lit de billes « classique ». Si la porosité interne des grains n'entraîne pas de collecte supplémentaire des particules, il pourrait cependant être envisagé d'utiliser les zéolithes, compte tenu de leur efficacité en-dessous de 20 ou 30 nm, pour piéger en une seule étape gaz et aérosols très fins (en gardant néanmoins à l'esprit que les particules collectées vont progressivement encrasser le lit). Les tamis moléculaires pourraient également s'avérer intéressants comme procédé de séparation gaz / particules, si la fraction d'intérêt se situe entre 40 et 100 nm : les gaz seraient alors piégés par adsorption, contrairement aux particules, récupérées en sortie de lit (perméance quasi-totale). Cette étude demande donc à être approfondie, en testant notamment d'autres types de zéolithe, tout en caractérisant leur efficacité d'adsorption vis-à-vis de différents gaz. De même, il conviendrait de vérifier expérimentalement l'influence de la longueur L_b du lit de billes (égale à 14 cm pour toutes les valeurs de perméance présentées ici), et surtout celle de la charge portée par les particules.

Conclusions et Perspectives

L'état de l'art sur la filtration des aérosols nanométriques laissait apparaître en 2005 de fortes incertitudes quant à l'efficacité des médias filtrants en dessous de 20 nm. Aujourd'hui, compte tenu des études publiées depuis 3 ans, et des résultats rapportés dans ce mémoire, il semble qu'aucune remontée de perméance imputable à un phénomène de rebond thermique des particules n'existe, et ce jusque 4 nm de diamètre au moins.
D'un point de vue théorique, cette incohérence avec la théorie de Wang et Kasper (1991) peut s'expliquer par une sous-estimation, de la part de ces auteurs, des forces d'adhésion entre fibres et particules. Ainsi, selon nos calculs et en utilisant des valeurs a priori plus raisonnables pour les différentes grandeurs mises en jeu dans le modèle, aucune baisse d'efficacité des médias ne devrait être observé au-dessus de 1 nm.
Sur le plan expérimental, les différentes études de la littérature rapportant l'observation d'une hausse de la perméance des médias testés en dessous d'un certain diamètre d'aérosol peuvent quant à elles s'expliquer par l'existence de nombreuses sources d'erreurs possibles, essentiellement dues aux appareils de mesure. En effet, comme nous avons pu le voir, un DMA peut, si l'on n'y prend garde, ne pas sélectionner le diamètre de particules attendu (en raison de la présence de gaz autre que de l'air par exemple). De même, la configuration en double-conduite, pourtant recommandée par Heim et al. (2005), peut amener l'observation d'une fausse remontée de perméance si les deux conduites ne sont pas strictement identiques.

Menées dans des conditions opératoires rigoureuses et parfaitement contrôlées, nos mesures ne présentent aucune baisse d'efficacité des médias dans le domaine ultrafin, quel que soit leur type (grille, non-tissé ou lit granulaire) ou la nature chimique des particules (cuivre ou carbone), et ce conformément aux théories classiques de la filtration (capture par diffusion et forces électrostatiques). Les modèles proposés dans la littérature pour représenter cette efficacité sont cependant discutables. Tandis que les expressions de Kirsch et Fuchs (1968) / Cheng et Yeh (1980) et de Wilson et Geankopolis (1966) semblent bien appropriées pour estimer la capture des particules par diffusion brownienne, respectivement au travers d'une grille et d'un lit granulaire, le modèle de Wang et al. (2007) en revanche ne traduit qu'une efficacité de collecte d'ensemble, uniquement valable pour des aérosols globalement neutres et à condition que l'influence d'éventuelles forces électrostatiques reste limitée. Ainsi, alors qu'elle évolue en fonction du nombre de Péclet à la puissance $-2/3$ dans le cas des grilles et des lits granulaires, l'efficacité unitaire de collecte par diffusion brownienne η_d pour les filtres non-tissés varierait selon nous en fonction de la puissance $-1/2$ de Pe. Il conviendrait cependant de vérifier expérimentalement ce dernier point. Pour ce faire, il sera nécessaire de mettre au point une méthode de production d'aérosols non-chargés, et non d'aérosols globalement neutres. Une solution envisageable pourrait être de partir de cette génération d'aérosols à l'équilibre de Boltzmann, et de précipiter électrostatiquement les fractions g(N) de particules chargées entre les deux plaques d'un condensateur. Les particules non-chargées seraient alors les seules à ne pas être déviées par le champ électrique appliqué entre les deux plaques, et pourraient ainsi être envoyées sur les filtres testés.

Lorsque les aérosols sont chargés, des forces électrostatiques participent à la collecte des particules et augmentent l'efficacité globale du filtre. La nature de ces forces varie cependant en fonction de la nature des fibres du média. Selon nous, il est question de force image lorsque les filtres sont en fibre de verre, et de forces coulombiennes lorsque les fibres sont synthétiques, en polyamide ou en polyester par exemple. Différentes expressions de ces forces sont proposées dans le présent rapport en fonction des cas de figure rencontrés. Travailler avec des médias dont la charge est parfaitement connue et contrôlée permettrait de confirmer ces équations, qui ont nécessité pour être établies d'estimer les densités de charge des filtres, sans pouvoir expérimentalement les vérifier (bien que l'ordre de grandeur trouvé semble correct).

En résumé, plus l'aérosol est fin, plus l'efficacité de collecte des médias est grande. Autrement dit, d'un point de vue hygiène et sécurité, la protection vis-à-vis des nanoparticules ne devrait pas poser de problème particulier. Pour s'en assurer pleinement, il conviendra de tester l'efficacité des appareils de protection respiratoires (APR) à proprement parler, ainsi que celle des filtres électrets, couramment utilisés en filtration. L'ensemble des éléments rapportés dans ce mémoire devrait constituer une base solide pour mener à bien cette étude et interpréter les résultats qui seront obtenus.

Si les filtres se montrent a priori efficaces vis-à-vis des nanoparticules, la moindre fuite peut augmenter considérablement leur perméance, surtout si le média présente une forte résistance à l'écoulement. Cette situation est bien représentée par un modèle semi-empirique que nous avons développé en différenciant le flux d'aérosol passant par la fuite de celui traversant le matelas fibreux du filtre. L'expression obtenue nécessite actuellement de connaître les dimensions de la fuite et de déterminer expérimentalement la perte de charge du filtre percé ΔP_f. Etre capable de prédire la résistance à l'écoulement d'un média pour une taille de perforation donnée à partir des seules caractéristiques physiques du filtre permettrait de rendre ce modèle 100% théorique. Il serait certainement intéressant d'étudier aussi l'influence du colmatage du filtre percé sur sa perméance dans le domaine ultrafin. On peut raisonnablement penser que la perte de charge du matelas fibreux augmentant avec la formation d'un dépôt de nanoparticules, un flux plus important d'aérosol va passer par la fuite, et augmenter la perméance globale P_f. A moins que les particules ne parviennent à reboucher la fuite, auquel cas la perméance diminuerait… Il est à noter cependant que pour une telle étude, les concentrations particulaires en sortie de DMA étant très faibles, le colmatage du filtre pour chaque taille d'aérosol va se révéler très long. Aussi, d'un point de vue pratique, il vaudra certainement mieux dans un premier temps travailler avec l'ensemble de la distribution granulométrique produite en sortie de générateur, centrée, pour le Palas® GFG-1000 équipé d'électrodes de cuivre, aux alentours de 7 nm.

Pour terminer, en filtration, et d'après Asgharian et Cheng (2002) et Boskovic et al. (2005), la forme des particules peut jouer un rôle déterminant sur l'efficacité de capture des médias. Il serait donc intéressant de pouvoir étudier la perméance des filtres vis-à-vis de nanoparticules de forme singulière, comme les nanotubes de carbone par exemple, dont la structure allongée n'est pas sans rappeler celle des fibres d'amiante [Poland et al. (2008)]. Pour cela, il conviendra avant tout de mettre au point une technique de génération stable et reproductible de nanotubes de carbone sous forme aérosol, ce qui risque de ne pas être simple. L'une des voies envisagées durant cette thèse a été la nébulisation d'une solution liquide, mais la mise en suspension des nanotubes de carbone semble une tâche compliquée [Badaire (2005)], d'autant plus difficile qu'il n'existe pas une, mais plusieurs sortes de nanotubes : mono ou multi-parois, rapports longueur sur diamètre différents.... Des efforts de recherche technologique conséquents (développement d'un générateur) seront donc nécessaires en amont avant de pouvoir tester l'efficacité des médias vis-à-vis de ces nanotubes.

En conclusion, beaucoup reste encore à faire et à découvrir sur la filtration des aérosols nanométriques, aussi bien sur le plan théorique qu'expérimental. Pour paraphraser Richard Phillips Feynman (1960), considéré comme le père des nanotechnologies suite à son discours du 19 décembre 1959 à la réunion annuelle de l'American Physical Society, à Caltech : There is <u>still</u> Plenty of Rooms at the Bottom.

Références Bibliographiques

3M Technical Data Bulletin #171 (2006) *Nanotechnology and Respirator Use Issues*.

Interagency Working Group on Nanoscience, Engineering and Technology (2000). *National Nanotechnology Initiative: Leading to the Next Industrial Revolution*.

CMP Cientifica (2002). *Nanotech - The Tiny Revolution*.

Fundación de la Innovación Bankinter (2006). *Nanotechnology: The Industrial Revolution of the 21st Century*.

norme ASTM E2456 (2006). *Standard Terminology Relating to Nanotechnology*.

Agarwal, J. K. et Sem, G. J. (1980). *Continuous Flow Single-Particle-Counting Condensation Nuclei Counter*, Journal of Aerosol Science, 11, 343-357.

Ahn, K. et Liu, B. (1990). *Particle Activation and Droplet Growth Processes in Condensation Nucleus Counter -I. Theoretical background*, Journal of Aerosol Science, 21, 249-261.

Aitken, J. (1888). *On the Number of Dust Particles in the Atmosphere*, Transactions of the Royal Society of Edinburgh, 35, 1-19.

Allen, M. D. et Raabe, O. G. (1982). *Re-evaluation of Millikan Oil Drop Data for the Motion of Small Particles in Air*, Journal of Aerosol Science, 13, 537-547.

Allen, M. D. et Raabe, O. G. (1985). *Slip Correction Measurements of Spherical Solid Aerosol-Particles in an Improved Millikan Apparatus*, Aerosol Science and Technology, 4, 269-286.

Alonso, M. et Alguacil, F. J. (1999). *Filtration of Unipolarly Charged Aerosol Nanoparticles with an Initially Discharged Dielectric Screen*, Journal of Colloid and Interface Science, 216, 71-76.

Alonso, M. et Alguacil, F. J. (2007). *Penetration of Aerosol undergoing Combined Electrostatic Dispersion and Diffusion in a Cylindrical Tube*, Journal of Aerosol Science, 38, 481-493.

Alonso, M., Alguacil, F. J., Santos, J. P., Jidenko, N. et Borra, J. P. (2007). *Deposition of Ultrafine Aerosol Particles on Wire Screens by Simultaneous Diffusion and Image Force*, Journal of Aerosol Science, 38, 1230-1239

Alonso, M., Kousaka, Y., Hashimoto, T. et Hashimoto, N. (1997). *Penetration of Nanometer-Sized Aerosol Particles through Wire Screen and Laminar Flow Tube*, Aerosol Science and Technology, 27, 471-480.

Arnall, A. H. (2003). *Future Technologies, Today's Choices*.

Asgharian, B. et Cheng, Y. S. (2002). *The Filtration of Fibrous Aerosols*, Aerosol Science and Technology, 36, 10-17.

Badaire, S. (2005). *Etude de Suspensions et de Fibres de Nanotubes de Carbone*. Thèse de l'Université Bordeaux I

Balazy, A., Podgorski, A. et Gradon, L. (2004). *Filtration of Nanosized Aerosol Particles in Fibrous Filters. I - Experimental Results*, Journal of Aerosol Science, 35, 967-968.

Bartz, H., Fissan, H. et Liu, B. Y. H. (1987). *A New Generator for Ultrafine Aerosols below 10 nm*, Aerosol Science and Technology, 6, 163-171.

Biswas, P. et Wu, C.-Y. (2005). *Critical Review: Nanoparticles and the Environment*, Journal of the Air and Waste Management Association, 55, 708-746.

Borm, P. J. A., Robbins, D., Haubold, S., Kuhlbusch, T., Fissan, H., Donaldson, K., Schins, R. P. F., Stone, V., Kreyling, W., Lademann, J., Krutmann, J., Warheit, D. et Oberdorster, E. (2006). *The Potential Risks of Nanomaterials: a review carried out for ECETOC*, Particle and Fibre Toxicology, 3, 11.

Boskovic, L., Altman, I. S., Agranovski, I. E., Braddock, R. D., Myojo, T. et Choi, M. (2005). *Influence of Particle Shape on Filtration Processes*, Aerosol Science and Technology, 39, 1184-1190.

Bradley, R. S. (1932). *The Cohesive Force between Solid Surfaces and the Surface Energy of Solids*, Philosophical Magazine, 13, 853-862.

Bricard, J., Delattre, P., Madelaine, G. et Pourprix, M. (1976). *Detection of Ultrafine Particles by means of a Continuous Flux Condensation Nuclei Counter*. in Liu B.Y.H.(1976). *Fine Particles*, Academic Press, New-York, 566-580.

Brown, R. C. (1993). *Air Filtration: an Integrated Approach to the Theory and Applications of Fibrous Filters*. Pergamon Press, Oxford.

Brown, R. C. (2001). *Filtration in Industrial Hygiene*, AIHA Journal, 62, 633-643.

Buckley, R. L. et Loyalka, S. K. (1989). *Cunningham Correction Factor and Accomodation Coefficient: Interpretation of Millikan's Data*, Journal of Aerosol Science, 20, 347-349.

Chen, C. C., Ruuskanen, J., Pilacinski, W. et Willeke, K. (1990). *Filter and Leak Penetration Characteristics of a Dust and Mist Filtering Facepiece*, AIHA Journal, 51, 632-639.

Chen, D.-R., Pui, D. Y. H., Hummes, D., Fissan, H., Quant, F. R. et Sem, G. J. (1998). *Design and Evaluation of a Nanometer Aerosol Differential Mobility Analyzer (Nano-DMA)*, Journal of Aerosol Science, 29, 497-509.

Cheng, Y. S. et Yeh, H. C. (1980). *Theory of a Screen-Type Diffusion Battery*, Journal of Aerosol Science, 11, 313-320.

Churaev, N. V. (2000). *Liquid and Vapor Flows in Porous Bodies*. Gordon & Breach, London.

Clayden, J., Greeves, N., Warren, S. et Wothers, P. (2002). *Chimie Organique*. traduit de l'anglais par A. Pousse, De Boeck, Manchester.

Davies, C. N. (1973). *Air Filtration*. Academic Press London, New-York.

Donaldson, K., Stone, V., Clouter, A., Renwick, L. et MacNee, W. (2001). *Ultrafine Particles*, Occupational and Environmental Medicine, 58, 211-216.

Emi, H., C., K., Otani, Y. et Ishiguro, T. (1987). *Collecte Mechanisms of Electret Filter*, Particulate Science and Technology, 5, 161-171.

Evans, D. E., Harrison, R. M. et Ayres, J. G. (2003). *The Generation and Characterisation of Elemental Carbon Aerosols for Human Challenge Studies*, Journal of Aerosol Science, 34, 1023-1041.

Evans, D. E., Harrison, R. M. et Ayres, J. G. (2003). *The Generation and Characterization of Metallic and Mixed Element Aerosols for Human Challenge Studies*, Aerosol Science and Technology, 37, 975-987.

Feynman, R. P. (1960). *There's Plenty of Room at the Bottom*, Engineering and Science, 23, 22-36.

Fissan, H., Hummes, D., Stratmann, F., Büscher, P., Neumann, S., Pui, D. Y. H. et Chen, D. (1996). *Experimental Comparison of Four Differential Mobility Analyzers for Nanometer Aerosol Measurements*, Aerosol Science and Technology, 24, 1-13.

Frising, T. (2004). *Etude de la Filtration des Aérosols Liquides et de Mélanges d'Aérosols Liquides et Solides*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy

Gleiche, M., Hoffschulz, H. et Lenhert, S. (2006). *Nanotechnology in Consumer Products*, Nanoforum Report.

Gormley, P. G. et Kennedy, M. (1949). *Diffusion from a Stream Flowing through a Cylindrical Tube*, Proceedings of the Royal Irish Academy, 52, 163-169.

Greenwood, J. A. (1997). *Adhesion of Elastic Spheres*, Proceedings of the Royal Society of London A, 453, 1277-1297.

Gutfinger, C. et Tardos, G. (1979). *Theoretical and Experimental Investigation on Granular Bed Dust Filters*, Atmospheric Environment, 13, 853-867.

Hamaker, H. C. (1937). *The London-Van der Waals Attraction between Spherical Particles*, Physica, 4, 1058-1072.

Happel, J. (1959). *Viscous Flow relative to Arrays of Cylinders*, AICHE Journal, 5, 174-177.

Heim, M., Mullins, B. J., Wild, M., Meyer, J. et Kasper, G. (2005). *Filtration Efficiency of Aerosol Particles below 20 Nanometers*, Aerosol Science and Technology, 39, 782-789.

Helsper, C., Mölter, W., Löffler, F., Wadenpohl, C., Kaufmann, S. et Wenninger, G. (1993). *Investigations of a New Aerosol Generator for the Production of Carbon Aggregate Particles*, Atmospheric Environnement, 27A, 1271-1275.

Hervé-Bazin, B. (2007). *Les Nanoparticules : un Enjeu Majeur pour la Santé au Travail ?* EDP Sciences, Les Ulis.

Hinds, W. C. (1999). *Aerosol Technology*. John Wiley & Sons, New York.

Hinds, W. C. et Bellin, P. (1987). *Performance of Dust Respirators with Facial Seal Leaks: II. Predictive Model*, American Industrial Hygiene Association Journal, 48, 842-847.

Hinds, W. C. et Kraske, G. (1987). *Performance of Dust Respirators with Facial Seal Leaks: I. Experimental*, American Industrial Hygiene Association Journal, 48, 836-841.

Huang, S.-H., Chen, C.-W., Chang, C.-P., Lai, C.-Y. et Chen, C.-C. (2007). *Penetration of 4.5 nm to 10 µm Aerosol Particles through Fibrous Filters*, Journal of Aerosol Science, 38, 719-727.

Huang, Z., Chen, H., Chen, Z.-K. et Roco, M. C. (2004). *International Nanotechnology Development in 2003: Country, Institution, and Technology Field Analysis based on USPTO Patent Database*, Journal of Nanoparticle Research, 6, 325-354.

Hullmann, A. (2006). *The Economic Development of Nanotechnology - an Indicators Based Analysis*.

Hutchins, D. K., Harper, M. H. et Felder, R. L. (1995). *Slip Correction Measurements for Solid Spherical Particles by Modulated Dynamic Light Scattering*, Aerosol Science and Technology, 22, 202-218.

Ichitsubo, H., Hashimoto, T., Alonso, M. et Kousaka, Y. (1996). *Penetration of Ultrafine Particles and Ion Clusters through Wire Screens*, Aerosol Science and Technology, 24, 119-127.

Ishida, Y. (1923). *Determination of Viscosities and of the Stokes-Millikan Law Constant by the Oil Drop Method*, Physical Review, 21, 550-563.

Israelachvili, J. (1991). *Intermolecular & Surface Forces*. Academic Press, London.

Japuntich, D., Franklin, L., Pui, D. Y. H., Kuehn, T. et Kim, S. C. (2006). *Air Filtration Testing using the TSI 8160 Automated Filter Tester for Solid and Liquid Aerosols of 15 to 400 nm Diameter*, Journal of Nanoparticle Research, Special Issue: Nanotechnology and Occupational Health.

Johnson, K. L. (1997). *Adhesion and Friction between a Smooth Elastic Spherical Asperity and a Plane Surface*, Proceedings of the Royal Society of London A, 453, 163-179.

Johnson, K. L., Kendall, K. et Roberts, A. D. (1971). *Surface Energy and the Contact of Elastic Solids*, Proceedings of the Royal Society of London A, 324, 301-313.

Jung, J. H., Oh, H. C., Noh, H. S., Ji, J. H. et Kim, S. S. (2006). *Metal Nanoparticle Generation using a Small Ceramic Heater with a Local Heating Area*, Journal of Aerosol Science, 37, 1662-1670.

Kadin, Y., Kligerman, Y. et Etsion, I. (2008). *Loading-Unloading of an Elastic-Plastic Adhesive Spherical Microcontact*, Journal of Colloid and Interface Science, 321, 242-250.

Kasper, G., Preining, O. et Matteson, M. J. (1978). *Penetration of a Multistage Diffusion Battery at Various Temperatures*, Journal of Aerosol Science, 9.

Keiper, A. (2003). *The Nanotechnology Revolution*, The New Atlantis, 2, 17-34.

Kim, C. S., Bao, L., Okuyama, K., Shimada, M. et Niinuma, H. (2006). *Filtration Efficiency of a Fibrous Filter for Nanoparticles*, Journal of Nanoparticle Research, 8, 215-221.

Kim, J. H., Mulholland, G. W., Kukuck, S. R. et Pui, D. Y. H. (2005). *Slip Correction Measurements of Certified PSL Nanoparticles using a Nanometer Differential Mobility Analyzer (Nano-DMA) for Knudsen Number from 0,5 to 83*, Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, 110, 31-54.

Kim, S. C., Harrington, M. et Pui, D. Y. H. (2006). *Filter Collecte Efficiency for Nanoscale Particles*, Journal of Nanoparticle Research, Special Issue: Nanotechnology and Occupational Health.

Kim, S. C., Harrington, M. S. et Pui, D. Y. H. (2007). *Experimental Study of Nanoparticles Penetration through Commercial Filter Media*, Journal of Nanoparticle Research, 9, 117-125.

Kirsch, A. A. et Fuchs, N. A. (1968). *Studies on Fibrous Aerosol Filters. Diffusional Deposition of Aerosol in Fibrous Filters*, Annals of Occupational Hygiene, 11, 299-304.

Kirsch, A. A. et Stechkina, I. B. (1978). *The Theory of Aerosol Filtration with Fibrous Filters in Shaw D.T., Fundamentals of Aerosol Science*. Wiley, New York.

Kirsch, A. A. et Zhulanov, U. V. (1978). *Measurement of Aerosol Penetration through High Efficiency Filters*, Journal of Aerosol Science, 9, 291-298.

Knutson, E. O. et Whitby, K. T. (1975). *Aerosol Classification by Electric Mobility: Apparatus Theory and Applications*, Journal of Aerosol Science, 6, 443-451.

Kodas, T. T. et Hampden-Smith, M. J. (1999). *Aerosol Processing of Materials*. Wiley-VCH, New York.

Kops, J. A. M. M., Scholten, L. C., Deworm, J. P. et Zeevaert, T. (1986). *Penetration of Ultra-fine Particles through HEPA Filters*.

Kostoff, R. N., Koytcheff, R. G. et Lau, C. G. Y. (2007). *Global Nanotechnology Research Literature Overview*, Technological Forecasting and Social Change, 74, 1733-1747.

Kraemer, H. F. et Johnstone, H. F. (1955). *Collecte of Aerosol Particles in presence of Electrostatic Fields*, Industrial and Engineering Chemistry, 47, 2426-2434.

Kreyling, W. G., Semmler, M. et Möller, W. (2004). *Dosimetry and Toxicology of Ultrafine Particles*, Journal of Aerosol Medicine, 17, 140-152.

Kuwabara, S. (1959). *The Forces Experienced by Randomly Distributed Parallel Circular Cylinders or Spheres in a Viscous Flow at Small Reynolds Numbers*, Journal of the Physical Society of Japan, 14, 527-532.

Lamb, H. (1932). *Hydrodynamics*. Cambridge University Press, London.

Langmuir, I. (1942). *Report on Smokes and Filters*, Section 1 U.S. Office of Scientific Research and Development, 865, part IV.

Lee, K. W. et Liu, B. Y. H. (1982). *Experimental Study of Aerosol Filtration by Fibrous Filters*, Aerosol Science and Technology, 1, 35-46.

Lee, K. W. et Liu, B. Y. H. (1982). *Theoretical Study of Aerosol Filtration by Fibrous Filters*, Aerosol Science and Technology, 1, 147-161.

Lee, M., Otani, Y., Namiki, N. et Emi, H. (2002). *Prediction of Collecte Efficiency of High-Performance Electret Filters*, Journal of Chemical Engineering of Japan, 35, 57-62.

Liu, B. Y. H., Lee, J.-K., Mullins, H. et Danisch, S. G. (1993). *Respirator Leak Detection by Ultrafine Aerosols: a Predictive Model and Experimental Study*, Aerosol Science and Technology, 19, 15-26.

Liu, B. Y. H. et Pui, D. Y. H. (1974). *A Submicron Aerosol Standard and the Primary, Absolute Calibration of the Condensation Nuclei Counter*, Journal of Colloid and Interface Science, 47, 155-168.

Liu, B. Y. H. et Rubow, K. L. (1990). *Efficiency, Pressure Drop and Figure of Merit of High Efficiency Fibrous and Membrane Filter Media*. Vth World Filtration Congress, Nice.

Lowkis, B. et Motyl, E. (2001). *Electret Properties of Polypropylene Fabrics*, Journal of Electrostatics, 51-52, 232-238.

Lundgren, D. A. et Whitby, K. T. (1965). *Effect of a Particle Electrostatic Charge on Filtration by Fibrous Filters*, Industrial & Engineering Chemistry Process Design & Development, 4, 345-349.

Luther, W. (2004). *International Strategy and Foresight Report on Nanoscience and Nanotechnology*. Rapport du VDI Technologiezentrum.

Mann, L. et Goren, S. (1984). *Aerosol Capture in Granular Beds in the Sedimentation and Diffusion Dominated Regimes*, Aerosol Science and Technology, 3, 195-213.

March, J. (1992). *Advanced Organic Chemistry: Reactions, Mechanisms, and Structure*. John Wiley and Sons.

Maugis, D. (1992). *Adhesion of Spheres : the JKR-DMT Transition using a Dugdale Model*, Journal of Colloid and Interface Science, 150, 243-269.

McMurry, P. H. (2000). *The History of Condensation Nucleus Counters*, Aerosol Science and Technology, 33, 297-322.

Millikan, R. A. (1923). *Coefficients of Slip in Gases and the Law of Reflection of Molecules from the Surfaces of Solids and Liquids*, Physical Review, 21, 217-238.

Muller, V. M., Yushenko, V. S. et Derjaguin, B. V. (1980). *On the Influence of Molecular Forces on the Deformation of an Elastic Sphere and its Sticking to a Rigid Plane*, Journal of Colloid and Interface Science, 77, 91-101.

Natanson, G. L. (1957). *Diffusive Deposition of Aerosols on a Cylinder in a Flow in the case of Small Capture Coefficients*, Doklady Akademii Nauk SSSR, 112, 100-103.

Oberdörster, G., Oberdörster, E. et Oberdörster, J. (2005). *Nanotoxicology: an Emerging Discipline evolving from Studies of Ultrafine Particles*, Environmental Health Perspectives, 113, 823-839.

Otani, Y., Emi, H., Cho, S.-J. et Namiki, N. (1995). *Generation of Nanometer Size Particles and their Removal from Air*, Advanced Powder Technology, 6, 271-281.

Parsegian, V. A. (2006). *Van der Waals Forces : a Handbook for Biologists, Chemists, Engineers and Physicists*. Cambridge University Press, New York.

Payet, S., Boulaud, D., Madelaine, G. et Renoux, A. (1992). *Penetration and Pressure Drop of a HEPA Filter during Loading with Submicron Liquid Particles*, Journal of Aerosol Science, 7, 723-735.

Pich, J. (1987). *Gas Filtration Theory*. in Filtration Principles and Practices (edited by Matteson, M.J. and Orr, C.), New-York.

Poland, C. A., Duffin, R., Kinloch, I., Maynard, A., Wallace, W. A. H., Seaton, A., Stone, V., Brown, S., MacNee, W. et Donaldson, K. (2008). *Carbon Nanotubes introduced into the Abdominal Cavity of Mice Show Asbestos-Like Pathogenicity in a Pilot Study*, Nature Nanotechnology, Article in Press.

Preining, O. (1998). *The Physical Nature of Very, Very Small Particles and its Impact on their Behaviour*, Journal of Aerosol Science, 29, 481-495.

Pui, D. Y. H. et Chen, D.-R. (1997). *Nanometer Particles : a New Frontier for Multidisciplinary Research*, Journal of Aerosol Science, 28, 539-544.

Rader, D. J. (1990). *Momentum Slip Correction Factor for Small Particles in Nine Common Gases*, Journal of Aerosol Science, 21, 161-168.

Rao, N. et Faghri, M. (1988). *Computer Modeling of Aerosol Filtration by Fibrous Filters*, Aerosol Science and Technology, 8, 133-156.

Renn, O. et Roco, M. C. (2006). *Nanotechnology and the Need for Risk Governance*, Journal of Nanoparticle Research, 8, 153-191.

Renoux, A. et Boulaud, D. (1998). *Les Aérosols : Physique et Métrologie*. Lavoisier Tec&Doc, Paris.

Roco, M. C. (2005). *International Perspective on Government Nanotechnology Funding in 2005*, Journal of Nanoparticle Research, 7, 707-712.

Roth, C., Ferron, G. A., Karg, E., Lentner, B., Schumann, G., Takenaka, S. et Heyder, J. (2004). *Generation of Ultrafine Particle by Spark Discharging*, Aerosol Science and Technology, 38, 228-235.

Sanguansri, P. et Augustin, M. A. (2006). *Nanoscale Materials Development - A Food Industry Perspective*, Trends in Food Science and Technology, 17, 547-556.

Sato, S., Chen, D.-R. et Pui, D. Y. H. (2007). *Molecular Dynamics Study of Nanoparticle Collision with a Surface - Implication to Nanoparticle Filtration*, Aerosol and Air Quality Research, 7, 278-303.

Saxl, O. (2005). *Nanotechnology - a Key Technology for the Future of Europe*.

Scheibel, H. G. et Porstendörfer, J. (1983). *Generation of Monodisperse Ag- and NaCl-aerosols with Particle Diameters between 2 and 300 nm*, Journal of Aerosol Science, 14, 113-126.

Scheibel, H. G. et Porstendörfer, J. (1984). *Penetration Measurements for Tube and Screen-Type Diffusion Batteries in the Ultrafine Particle Size Range*, Journal of Aerosol Science, 15, 673-682.

Schwarz, U. D. (2003). *A Generalized Analytical Model for the Elastic Deformation of an Adhesive Contact between a Sphere and a Flat Surface*, Journal of Colloid and Interface Science, 261.

Shi, J. P., Harrison, R. M. et Evans, D. E. (2001). *Comparison of Ambient Particle Surface Area Measurement by Epiphaniometer and SMPS/APS*, Atmospheric Environnement, 35, 6193-6200.

Shin, W. G., Mulholland, G. W., Kim, S. C. et Pui, D. Y. H. (2008). *Experimental Study of Filtration Efficiency of Nanoparticles below 20 Nanometers at Elevated Temperatures*, Journal of Aerosol Science, 39, 488-499.

Sinclair, D. et Hoopes, G. S. (1975). *A Continuous Flow Nucleus Counter*, Journal of Aerosol Science, 6, 1-7.

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, S145-S146.

Stechkina, I. B. et Fuchs, N. A. (1966). *Studies on Fibrous Aerosol Filters - I / Calculation of Diffusional Deposition of Aerosols in Fibrous Filters*, Annals of Occupational Hygiene, 9, 59-64.

Steffens, J. et Coury, J. R. (2007). *Collecte Efficiency of Fiber Filters operating on the Removal of Nano-Sized Particles: I. Homogeneous Fibers*, Separation and Purification Technology, 58, 99-105.

Stenhouse, J. I. T. (1974). *The Influence of Electrostatic Forces in Fibrous Filtration*, Filtration and Separation, 11, 25-26.

Stolzenburg, M. R. (1988). *An Ultrafine Aerosol Size Distribution Measuring System*. University of Minnesota, Minneapolis

Tabor, D. (1977). *Surface Forces and Surface Interactions*, Journal of Colloid and Interface Science, 58, 2-13.

Tammet, H. (1995). *Size and Mobility of Nanometer Particles, Clusters and Ions*, Journal of Aerosol Science, 26, 459-475.

Tan, A. Y., Prasher, B. D. et Guin, J. A. (1975). *Mass Transfer in Non-Uniform Packing*, AICHE Journal, 21, 396-397.

Tardos, G., Abuaf, N. et Gutfinger, C. (1976). *Diffusional Filtration of Dust in a Fluidized Bed*, Atmospheric Environment, 10, 389-394.

VanGulijk, C. et Bal, E. A. (2004). *Measurement of Aerosol Filtration for Ultrafine Particles*, Journal of Aerosol Science, 35, 979-980.

VanOsdell, D. W., Liu, B. Y. H., Rubow, K. L. et Pui, D. Y. H. (1990). *Experimental Study of Submicrometer and Ultrafine Particle Penetration and Pressure Drop for High Efficiency Filters*, Aerosol Science and Technology, 12, 911-925.

Vaughan, N. P., Tierney, A. M. et Brown, R. C. (1994). *Penetration of 1.5-9.0 µm Diameter Monodisperse Particles through Leaks into Respirators*, Annals of Occupational Hygiene, 38, 879-893.

Wang, H.-C. (1996). *Comparison of Thermal Rebound Theory with Penetration Measurement of Nanometer Particles through Wire Screens*, Aerosol Science and Technology, 24, 129-134.

Wang, H.-C. et Kasper, G. (1991). *Filtration Efficiency of Nanometer-Size Aerosol Particles*, Journal of Aerosol Science, 22, 31-41.

Wang, J., Chen, D. R. et Pui, D. Y. H. (2007). *Modeling of Filtration Efficiency of Nanoparticles in Standard Filter Media*, Journal of Nanoparticle Research, 9, 109-115.

Weber, A., Willeke, K., Marchioni, R., Myojo, T., McKay, R., Donnelly, J. et Liebhaber, F. (1993). *Aerosol Penetration and Leakage Characteristics of Masks used in the Health Care Industry*, American Journal of Infection Control, 21, 167-173.

Wei, J., Chun-Shun, C., Cheong-Ki, C. et Chao, Z. (2006). *The Aerosol Penetration through an Electret Fibrous Filter*, Chinese Physics, 15, 1864-1870.

Wiedensohler, A. (1988). *Technical Note: an Approximation of the Bipolar Charge Distribution for Particles in the Sumicron Range*, Journal of Aerosol Science, 19, 387-389.

Willeke, K. (1976). *Temperature Dependence of Particle Slip in a Gaseous Medium*, Journal of Aerosol Science, 7, 381-387.

Wilson, E. et Geankopolis, C. (1966). *Liquid Mass Transfer at Very Low Reynolds Numbers in Packed Beds*, Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, 5, 9-14.

Witschger, O. et Fabriès, J.-F. (2005). *Particules Ultra-Fines et Santé au Travail - Caractéristiques et Effets Potentiels sur la Santé*, Hygiène et Sécurité au Travail, ND 2227, 21-35.

Yang, R. T. (1997). *Gas Separation by Adsorption Processes*. Imperial College Press, London.

Yoshioka, N., Emi, H. et Tamori, I. (1968). *Effect of Electrostatic Force in the Filtration Efficiency of Aerosols*, Kagaku Kogaku, 32, 815-820.

Zheng, F. (2002). *Thermophoresis of Spherical and Non-Spherical Particles: a Review of Theories and Experiments*, Advances in Colloid and Interface Science, 97, 255-278.

Annexes

Annexe A
–
Influence des Conditions Opératoires du Palas® GFG-1000 sur la Distribution Granulométrique de l'Aérosol Généré

La distribution granulométrique produite par le générateur Palas® GFG-1000 dépend, pour une nature d'électrodes donnée, des débits d'air et débits d'argon (respectivement au travers des pressions de détente P_{air} et P_{Ar}), et de la fréquence des étincelles (via la valeur f réglée au potentiostat de l'appareil). L'influence de chacun de ces trois paramètres a été étudiée en maintenant les deux autres constants (figures A-1, A-2 et A-3).

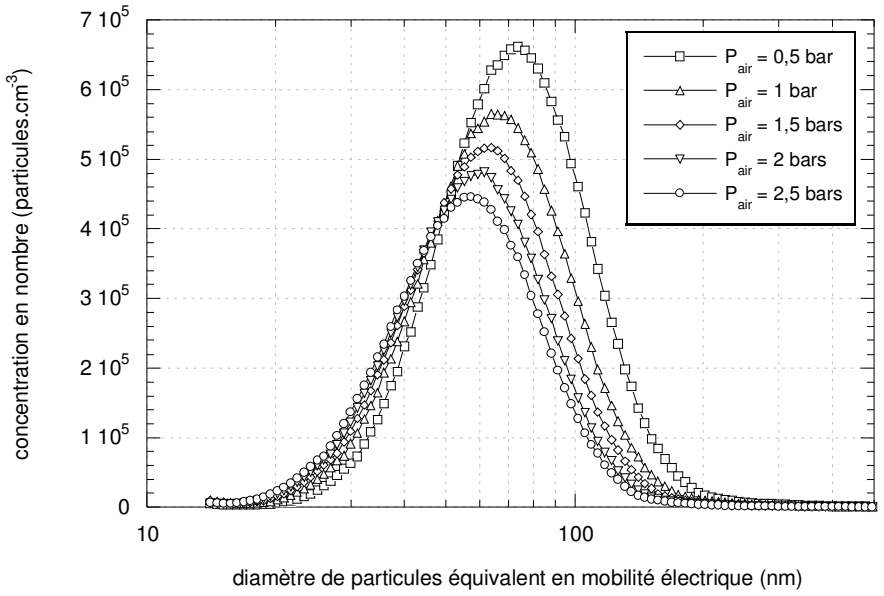


Figure A-1 : Influence de la pression de détente de l'air P_{air} sur la distribution granulométrique générée par le Palas® GFG-1000 (électrodes de graphite, P_{Ar} = 1,5 bars et f = 300)

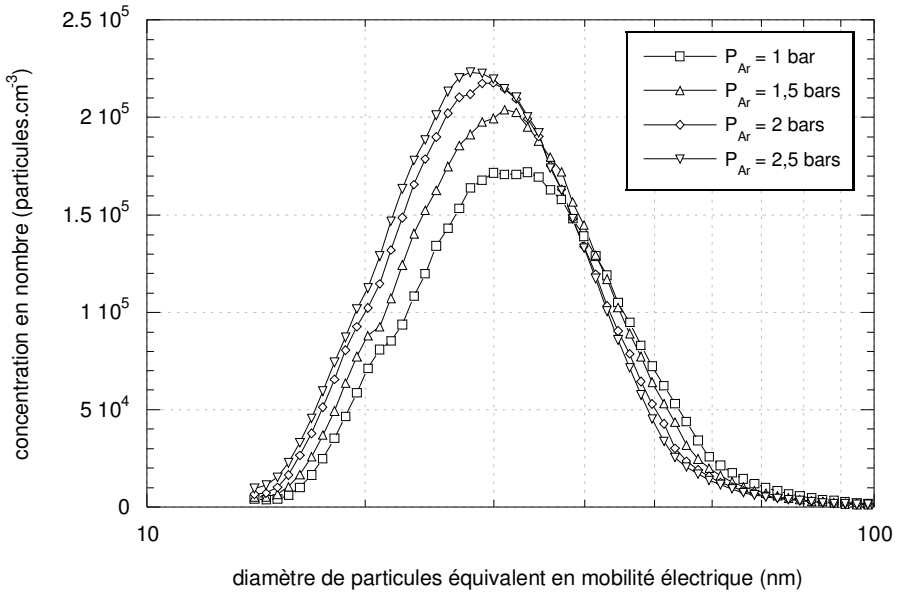


Figure A-2 : Influence de la pression de détente de l'argon P_{Ar} sur la distribution granulométrique générée par le Palas® GFG-1000 (électrodes de graphite, P_{air} = 1,5 bars et f = 20)

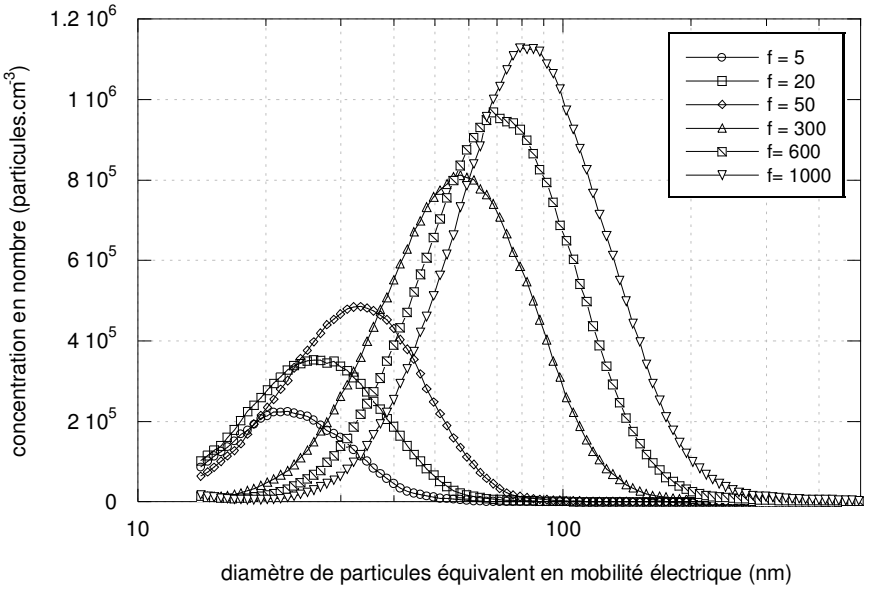


Figure A-3 : Influence de la fréquence d'étincelles sur la distribution granulométrique générée par le Palas® GFG-1000 (électrodes de graphite, P_{air} = 2 bars et P_{Ar} = 2,5 bars)

L'augmentation du débit d'air diminue logiquement, par dilution, la concentration en nombre de l'aérosol généré. Il réduit dans le même temps le diamètre moyen géométrique (les distributions étant log-normales, on parlera également de médiane), en limitant le phénomène d'agglomération des particules entre elles.
Une augmentation de la pression de détente P_{Ar} (figure A-2) entraîne une diminution de la médiane et, contrairement au débit d'air, une augmentation de la concentration en nombre, malgré la dilution engendrée. Ceci peut s'expliquer par le fait que le courant d'argon arrive directement sur les électrodes, dès la genèse des particules, tandis que l'air n'a qu'un rôle de diluant post-génération. A fort débit d'argon, la production de particules plus fines et plus nombreuses est favorisée, le temps de séjour de ces dernières dans la chambre de génération étant plus court.
Enfin, c'est sans aucun doute pour la fréquence d'étincelle que l'influence sur la distribution granulométrique de l'aérosol produit est la plus marquée et la plus spectaculaire (figure A-3). Comme on pouvait s'y attendre, augmenter le potentiostat f élève significativement la quantité de particules produites, ainsi que le diamètre moyen de l'aérosol (plus de particules, donc probabilité d'agglomération plus grande).

Ainsi, pour obtenir l'aérosol le plus fin possible, il conviendra de travailler à fortes pressions d'air et d'argon, mais à fréquence d'étincelle faible. Toutefois, il est à noter que ce type de configuration amène également les concentrations en nombre les plus basses.

Annexe B
–
Electromètre

Outre les compteurs à noyaux de condensation (CNC), un autre système permettant de détecter et mesurer la concentration d'un nanoaérosol est le système filtre + électromètre (par abus de langage, le terme électromètre seul est communément employé). Comme indiqué au chapitre II, l'emploi d'un tel appareil n'est possible que si l'aérosol est chargé. Le principe de fonctionnement est le suivant (figure A-4) : les particules chargées pénètrent jusqu'à un filtre situé à l'intérieur d'une cage métallique, appelée cage de Faraday, qui fait office d'écran aux différents parasites d'origine électromagnétique (en effet, les courants qui vont être mesurés étant très faibles, la moindre interférence pourrait fausser la mesure). Le filtre, isolé électriquement, est relié à un ampèremètre (appelé électromètre), dont la sensibilité est de l'ordre du femtoampère. Le courant I mesuré, induit par les charges des particules déposées sur le filtre s'écoulant vers la terre, permet alors de remonter à la concentration C de l'aérosol, via la relation :

$$C = \frac{I}{N\,e\,Q_e} \qquad \text{(A-1)}$$

avec N, le nombre relatif de charges élémentaires e portées par les particules, et Q_e, le débit d'aérosol au travers de l'électromètre.

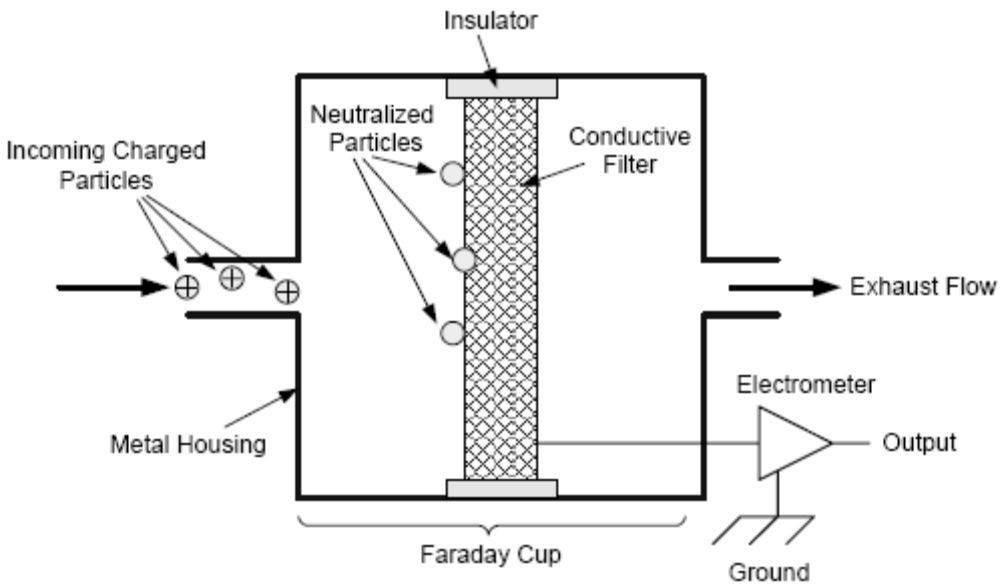


Figure A-4 : Principe de fonctionnement d'un électromètre (d'après documentation TSI®)

Comme énoncé au chapitre II, en l'absence de pertes et en supposant que l'efficacité de collecte du filtre est totale, l'« efficacité de comptage » d'un électromètre est de 1, quel que soit le diamètre d'aérosol, ce qui lui vaut d'être couramment utilisé pour l'étalonnage des CNC.

Annexe C
–
Vérification du Diamètre de Particules Sélectionné par notre Nano-DMA

Nous avons vérifié l'absence, en sortie de source ^{85}Kr, de « grosses » particules multichargées susceptibles de polluer l'aérosol fin sélectionné par le nano-DMA de la façon suivante. Un aérosol de cuivre (diamètre moyen aux alentours de 7 nm) est tout d'abord généré à partir du GFG-1000 (figure A-4). Après marquage des particules dans la source ^{85}Kr, un diamètre de particules $d_{p,i}$ (entre 4 et 30 nm) est sélectionné à l'aide d'un premier nano-DMA. A l'aval de celui-ci, la combinaison (Nano-DMA 2 + CNC 3022) balaye l'ensemble de la plage granulométrique 2-40 nm (sorte de SMPS sans source ^{85}Kr). Si des particules autres que celles de diamètre $d_{p,i}$ sont sélectionnées par le Nano-DMA 1 (car de mobilité équivalente à ces dernières), alors un pic de concentration apparaîtra au diamètre correspondant sur le spectre granulométrique mesuré par ce pseudo-SMPS.

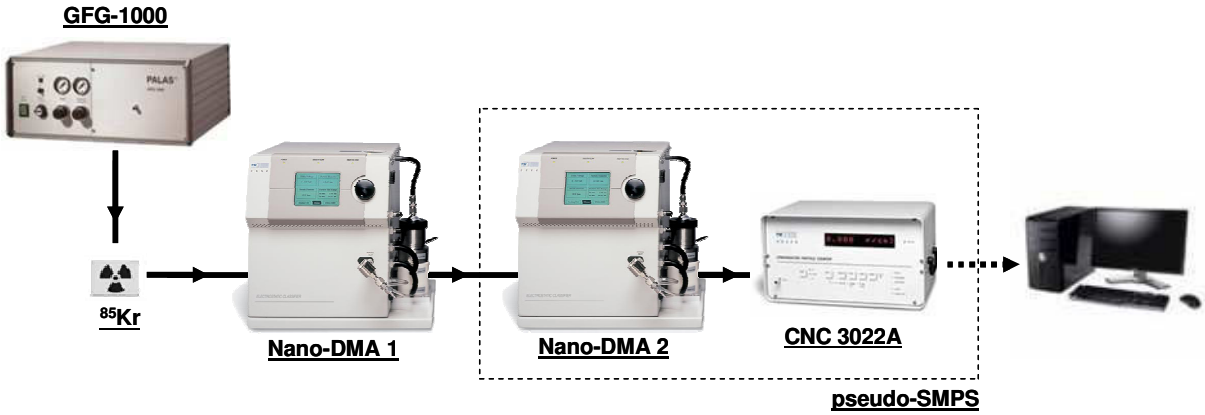


Figure A-5 : Montage utilisé pour vérifier l'absence de particules multichargées en sortie de source ^{85}Kr

La figure A-6 montre les résultats obtenus pour les onze diamètres de particules sélectionnés lors de nos études de filtration. La droite y = x est également tracée. Afin de vérifier la concordance entre les deux DMA utilisés, la même opération a été réalisée en intervertissant les rôles des nano-DMA 1 et nano-DMA 2 (figure A-7).

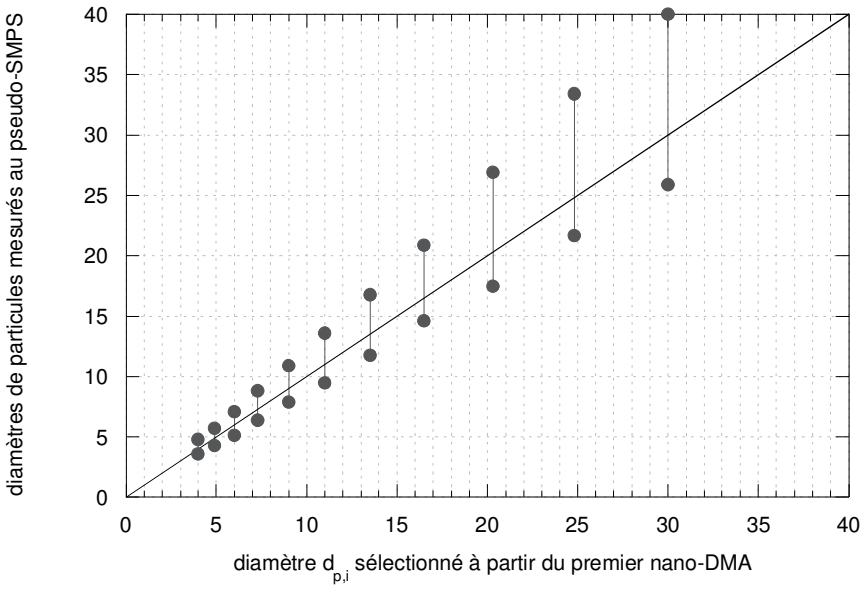


Figure A-6 : Plages de diamètres mesurées par le pseudo-SMPS lors de la sélection d'un diamètre de particules $d_{p,i}$ au niveau du premier nano-DMA (figure A-5)

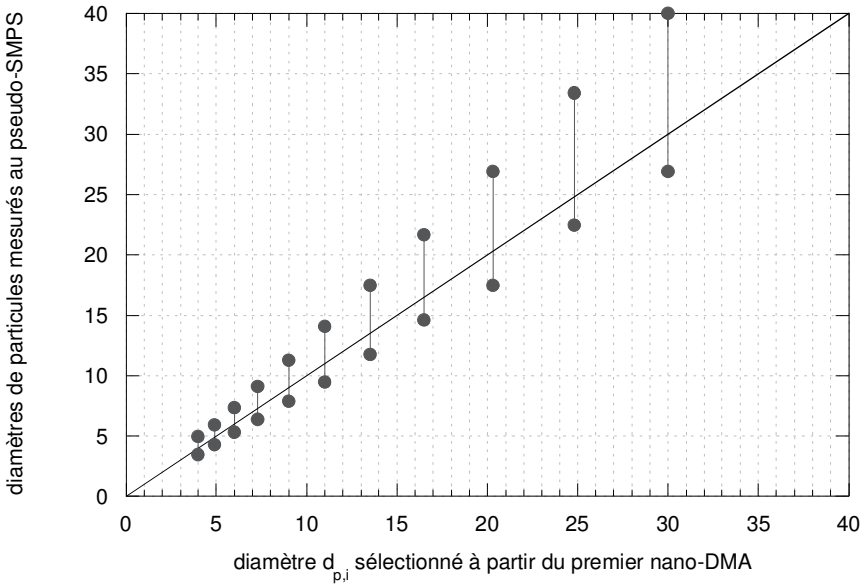


Figure A-7 : Plages de diamètres mesurées en intervertissant les rôles des nano-DMA 1 et 2 de la figure A-5

Quel que soit le diamètre de particules paramétré au niveau du premier nano-DMA, aucun pic correspondant de « grosses » particules de même mobilité électrique que l'aérosol sélectionné n'apparaît sur les spectres mesurés avec le second nano-DMA. En effet, une unique plage de diamètre (et non le seul diamètre $d_{p,i}$, en raison de la résolution de l'appareil et de sa bande-passante ΔZ_p) est bel et bien obtenue. Le diamètre sélectionné correspond bien à celui paramétré. L'aérosol en sortie de DMA est bien monodispersé.

Annexe D
–
Plages d'Utilisation Respectives des Long- et Nano-DMA TSI®
(selon données constructeur)

DMA	débit d'échantillonnage q_a ($L.min^{-1}$)	débit de sheath air q_{sh} ($L.min^{-1}$)	orifice de l'impacteur (cm)	plage de diamètres sélectionnables (nm)
Long-DMA 3081	0,3	3	0,0457	13 – 833
	0,6	6	0,0457	9 – 469
	1	10	0,0507	7,1 – 318
	1,5	15	0,071	5,7 – 239
Nano-DMA 3085	0,3	3	0,0457	4,4 – 168
	0,6	6	0,0457	3,1 – 111
	1	10	0,0507	2,4 – 83
	1,5	15	0,071	2 – 66

Annexe E
–
Validation de la Méthode de Sélection sans Passage Préalable dans la Source ^{85}Kr

Le protocole suivi est pratiquement le même que celui de l'annexe C, mais l'emplacement de la source ^{85}Kr est différent (figure A-8). On peut alors véritablement parler de SMPS en aval du premier nano-DMA.

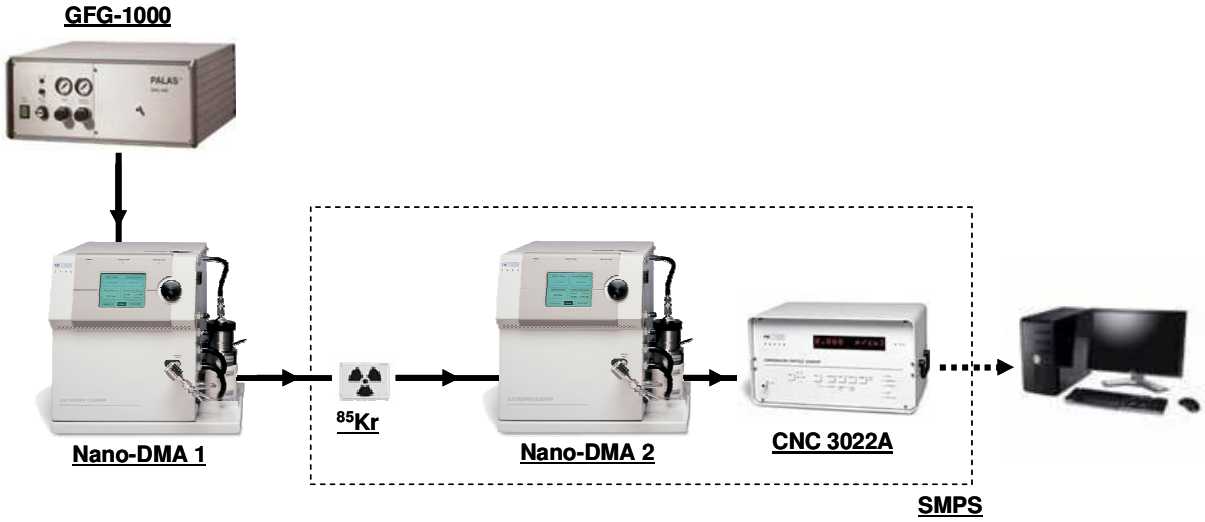


Figure A-8 : Montage utilisé pour valider la méthode de sélection de particules sans source

L'objectif est là encore de s'assurer qu'un seul et unique diamètre est bien sélectionné par le DMA, et non un « mélange » de différentes tailles de particules, de même mobilité électrique car porteuses d'un nombre de charges différent. Pour ce faire, un spectre granulométrique est réalisée via le SMPS composé de la source, du Nano-DMA 2 et du CNC, ce qui va permettre de vérifier la taille des particules sélectionnées par le premier DMA (figure A-9). Comme dans l'annexe C, les deux DMA utilisés ont été intervertis ; les résultats étant similaires pour les deux configurations, et afin de ne pas alourdir ce rapport, nous ne présentons qu'une seule des deux séries de mesures.

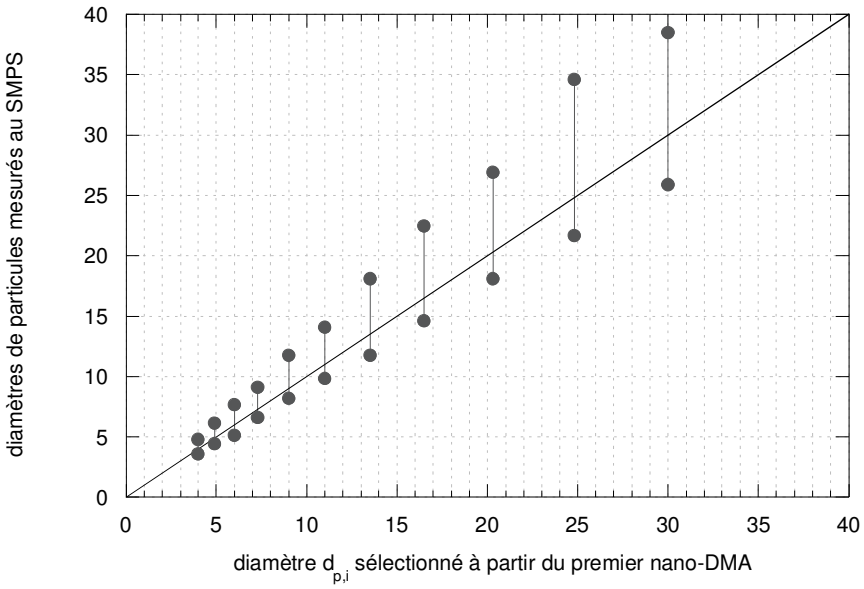


Figure A-9 : Plages de diamètres mesurées par le SMPS lors de la sélection d'un diamètre de particules $d_{p,i}$ au niveau du premier nano-DMA (figure A-8)

Un seul pic de concentrations est observé au SMPS. Le diamètre de particules mesuré en sortie de deuxième nano-DMA correspond bien à celui sélectionné par le premier DMA. On en déduit que les particules porteuses de charges en sortie de générateur GFG-1000 sont essentiellement monochargées, et que la source ^{85}Kr peut effectivement être by-passée (marquage des particules avant sélection non obligatoire). La méthode de sélection sans source est validée. Cette dernière peut être réservée à une neutralisation post-sélection (production d'aérosols monodispersés à l'équilibre de Boltzmann).

Annexe F
–
Efficacité de Comptage du CNC 3022A

L'efficacité de comptage ε_{CNC} de notre 3022A (figure II-10) en dessous de 30 nm a été vérifiée de la manière suivante (figure A-10) : un diamètre de particules est sélectionné à l'aide du nano-DMA de façon « conventionnelle » (atteinte de l'équilibre de Boltzmann avant entrée dans le sélectionneur). On obtient ainsi un aérosol monochargé, à un débit de 1,5 $L.min^{-1}$. Celui-ci est tout d'abord envoyé vers le CNC, qui indique une concentration détectée C_{mes}. Le même aérosol est ensuite dirigé avec le même débit vers un électromètre TSI® 3068B, qui mesure alors un courant I. A partir de la relation (A-1), il vient, pour le diamètre de particules sélectionné :

$$\varepsilon_{CNC} = \frac{N\, e\, Q_e\, C_{mes}}{I} \qquad \text{(A-2)}$$

avec Q_e = 1,5 L. min^{-1} et N = 1 (on sélectionne des particules monochargées positivement).

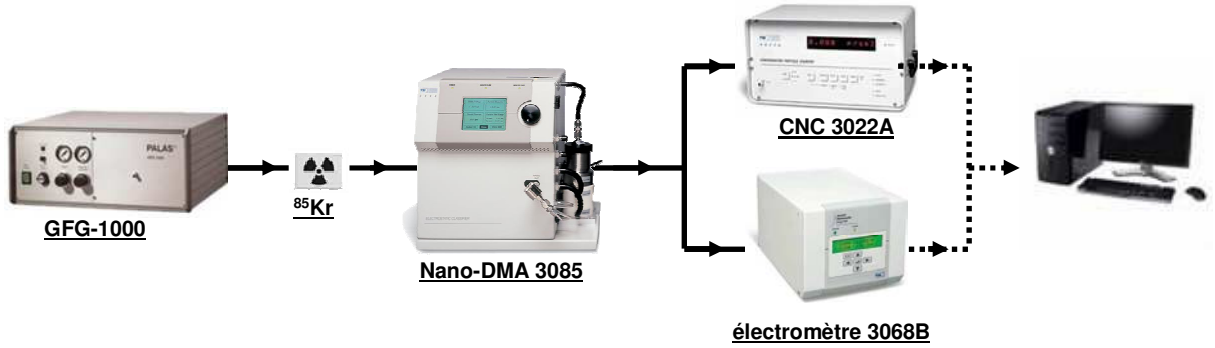


Figure A-10 : Montage utilisé pour vérifier l'efficacité de comptage du CNC 3022

Annexe G
–
Fonction de Transfert du Nano-DMA

Le montage utilisé pour mesurer la fonction de transfert de notre nano-DMA (Nano-DMA 2) est illustré figure A-11.

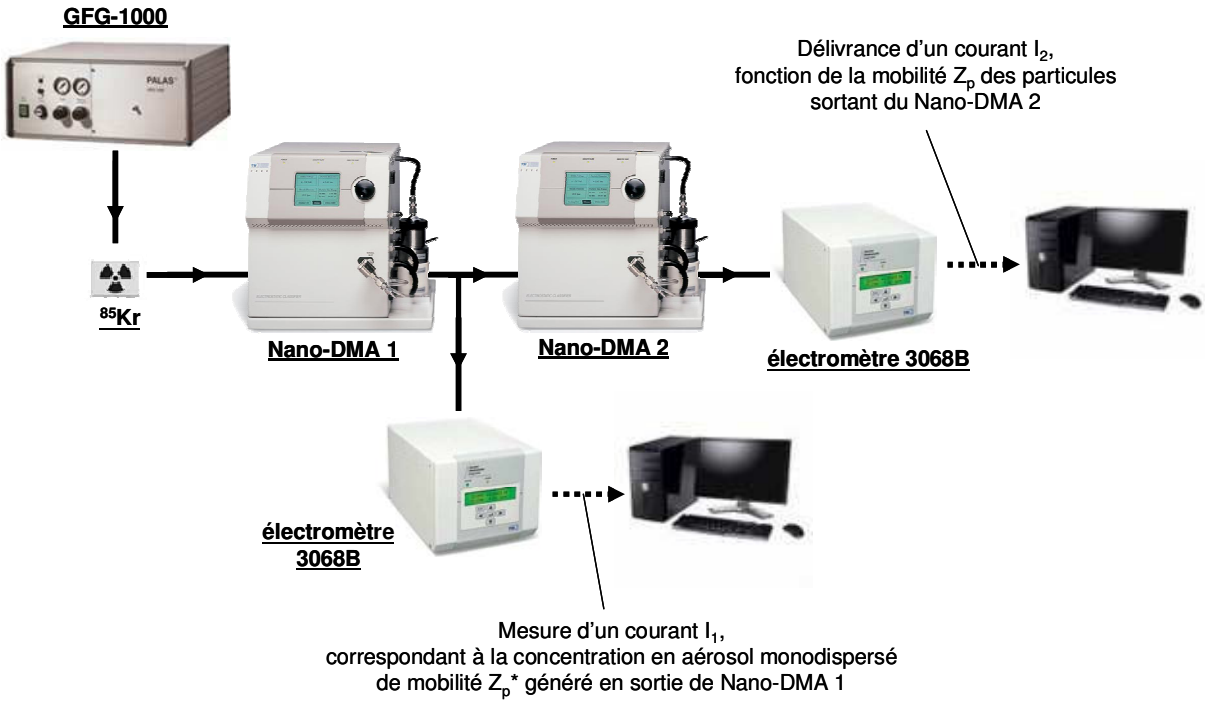


Figure A-11 : Montage utilisé pour mesurer la fonction de transfert de notre nano-DMA (Nano-DMA 2)

Le principe de la mesure est le suivant : un aérosol monodispersé positivement de diamètre d_p^* (et donc de mobilité Z_p^*) est généré en sortie de Nano-DMA 1. La concentration en particules est alors mesurée à l'aide d'un électromètre [courant I_1 ; équation (A-1)]. Les 1,5 L.min^{-1} d'aérosol produits sont ensuite dirigés vers un second DMA (celui dont on souhaite mesurer la fonction de transfert Ω), et l'électromètre placé en aval de ce dernier. Une plage de diamètre (ou de mobilité Z_p) est balayée avec le Nano-DMA 2, et le courant I_2 mesuré par l'électromètre pour chaque taille de particules est enregistré. La représentation du rapport I_2/I_1 en fonction de Z_p/Z_p^* donne, pour le diamètre de particules d_p^* sélectionné, la fonction de transfert Ω du Nano-DMA 2.

Annexe H
–
Efficacité de Transport E_T de la Conduite A

La première étape de cette étude a consisté à déterminer, à l'aide de notre électromètre (figure A-12), la concentration en particules de diamètre d_p^* débitée en sortie de Nano-DMA 1 (mesure d'un courant I). Cela nous permet de savoir la quantité de particules à l'entrée de la conduite A, qui va être diluée dans Q_{air} (Q_{air} varie en fonction de la vitesse souhaitée au niveau du porte-filtre). En sortie de conduite A, un débit $q_{a,2}$ de 1,5 L.min^{-1} est échantillonné par le Nano-DMA 2. La concentration en particules en sortie de ce second DMA, lorsque le diamètre de particules sélectionné par cet appareil est d_p^*, est mesurée par le CNC (C_{mes}). L'efficacité de transport E_T est alors calculée, pour le débit d'air d'accompagnement Q_{air} et le diamètre de particules d_p^* sélectionné par le Nano-DMA 1, de la manière suivante :

$$E_T = \frac{N\, e\, Q_e\, Q_{air}\, C_{mes}}{h\, \varepsilon_{CNC}\, q_{m,1}\, I} \qquad \text{(A-3)}$$

avec h, la hauteur de la fonction de transfert du nano-DMA pour le diamètre d_p^*.

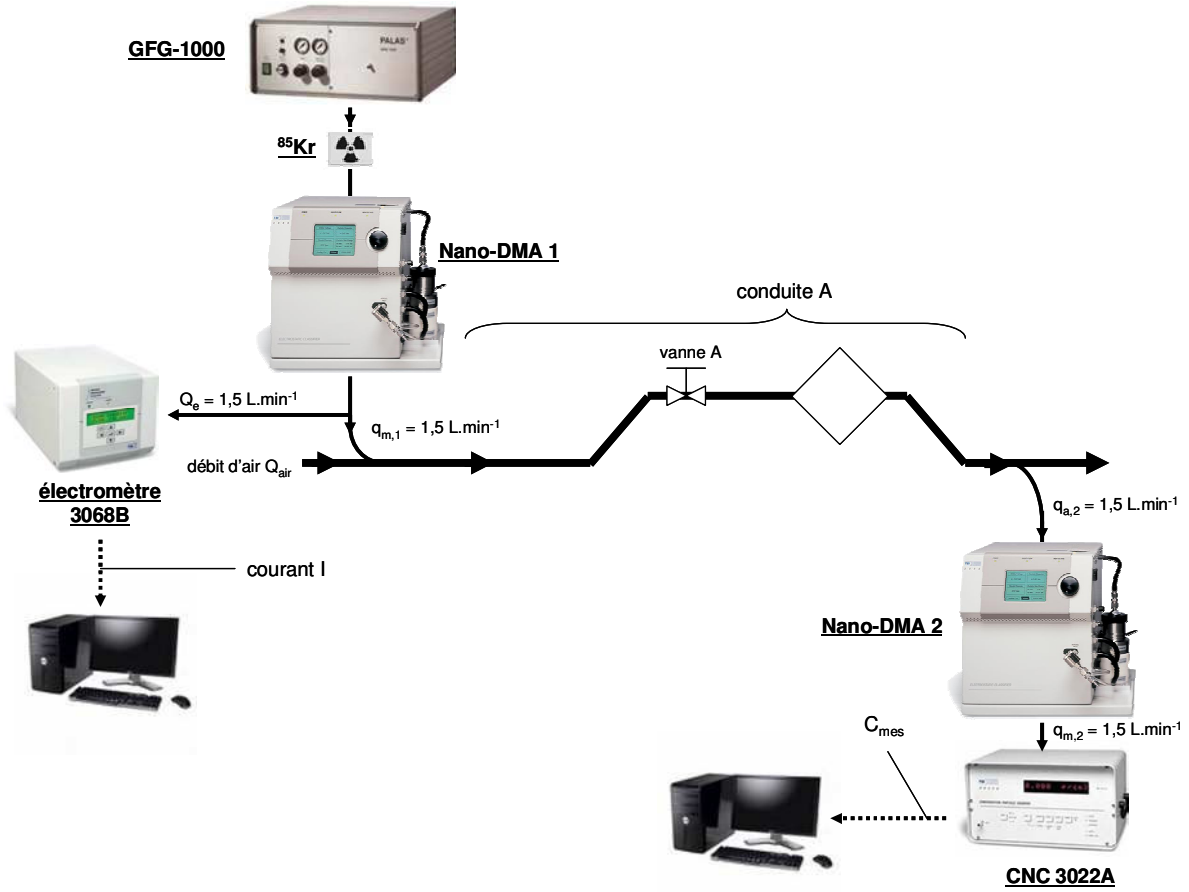


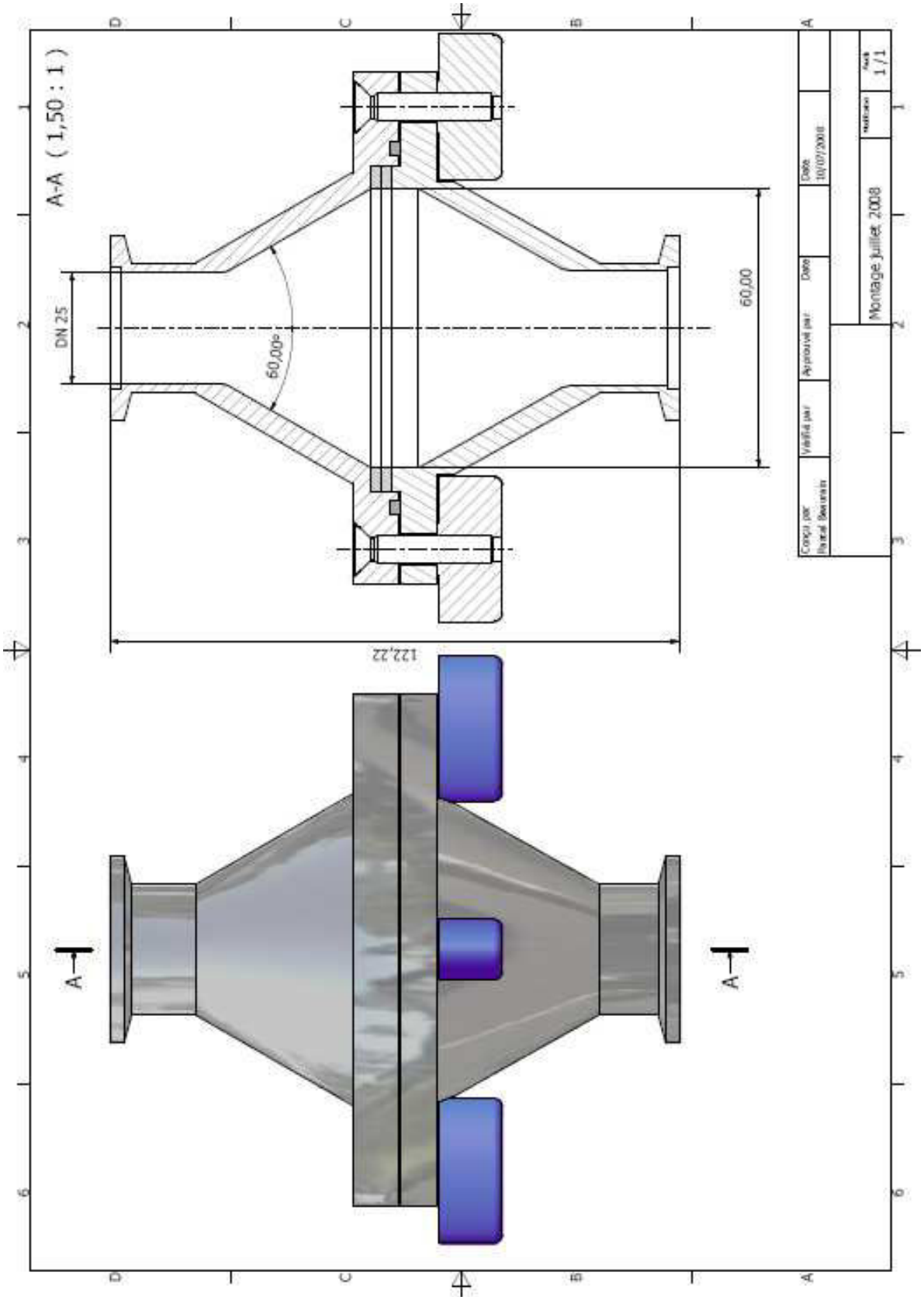
Figure A-12 : Montage utilisé pour mesurer l'efficacité de transport E_T dans la conduite A

Comme Q_e a été pris égal à $q_{m,1}$ pour la mesure de I, et que N = 1, l'équation (A-3) se résumé à :

$$E_T = \frac{e\, Q_{air}\, C_{mes}}{h\, \varepsilon_{CNC}\, I} \qquad \text{(A-4)}$$

On pourrait s'affranchir du terme h dans l'expression (A-4) (et ainsi réduire en partie l'incertitude sur E_T) en supprimant le Nano-DMA 2, et en connectant directement le CNC 3022A à la conduite A. Toutefois, comme expliqué au chapitre II, nous avons couplé l'étude du dépôt de particules au sein des canalisations à la vérification de l'absence d'agglomération dans ces mêmes conduites. En effet, la combinaison (Nano-DMA 2 + CNC) constitue ce que nous avons appelé en annexe C un pseudo-SMPS. Or, à partir de ce dernier, nous n'avons mesuré qu'un seul pic de concentration, centré autour de la valeur de diamètre sélectionné par le Nano-DMA 2 égale à d_p^* (soit la taille de particules sélectionnée par le Nano-DMA 1). Cela met en évidence qu'aucune agglomération n'a lieu entre l'entrée et la sortie de la conduite A, sans quoi le pic de concentration mesuré apparaîtrait, au niveau du second DMA, à un diamètre supérieur à d_p^*, voire la distribution granulométrique obtenue serait multimodale.

Annexe I
–
Dimensions des Porte-Filtres



Annexe J
–
Clichés MEB des Grilles Testées

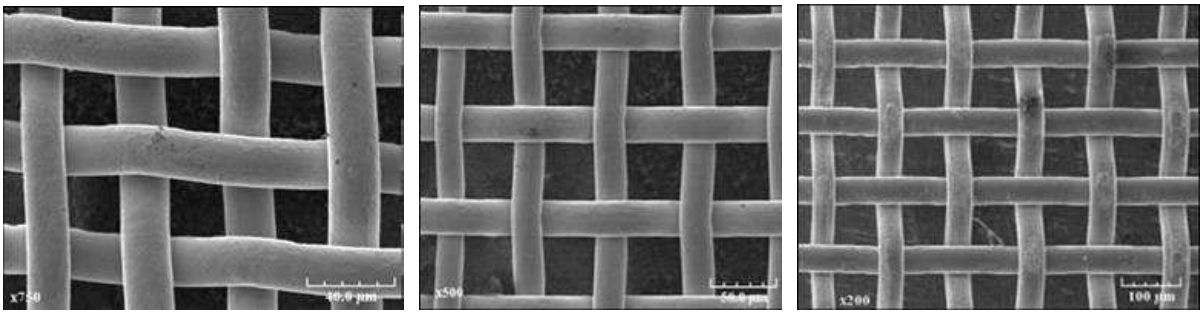


Figure A-13 : De gauche à droite : grille inox 25, inox 40 et inox 75

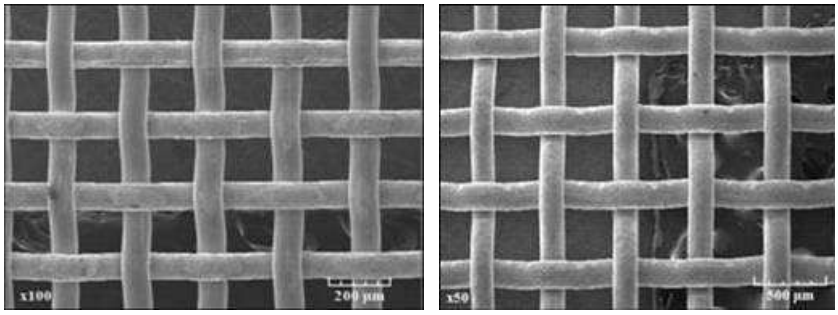


Figure A-14 : Grille inox 150 (à gauche) et inox 355 (à droite)

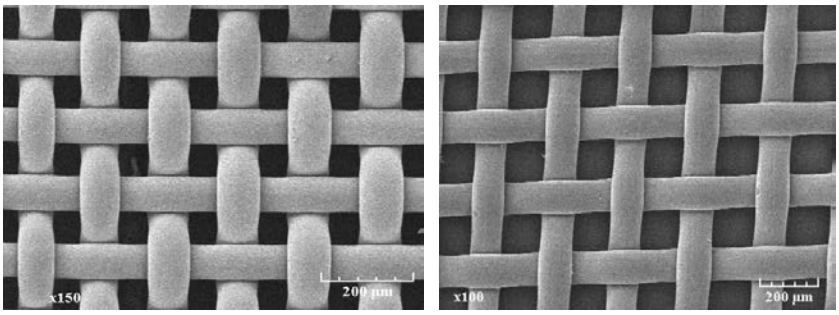


Figure A-15 : Grille nylon 75 (à gauche) et fluortex 150 (à droite)

Annexe K
–
Distributions de Tailles de Fibres des Filtres Testés

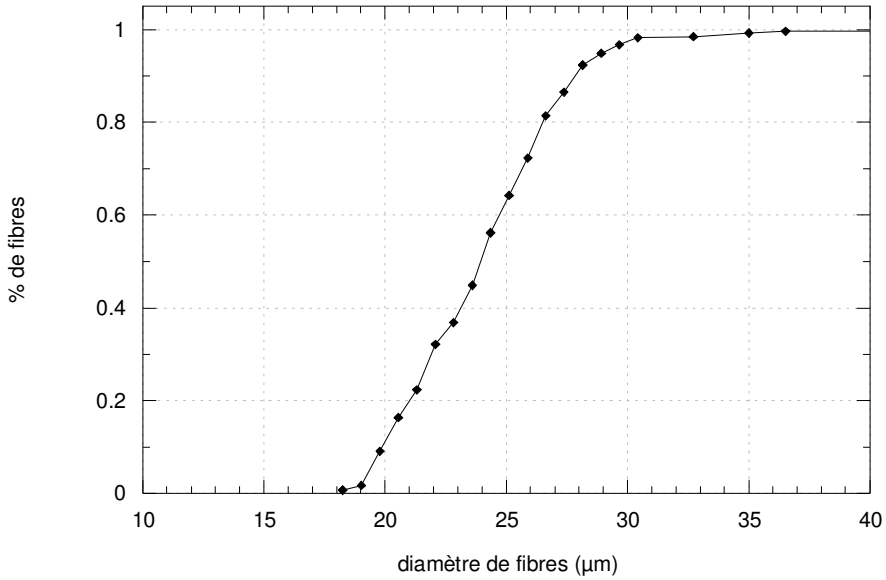


Figure A-16 : Distribution de taille des fibres du Reemay R2033

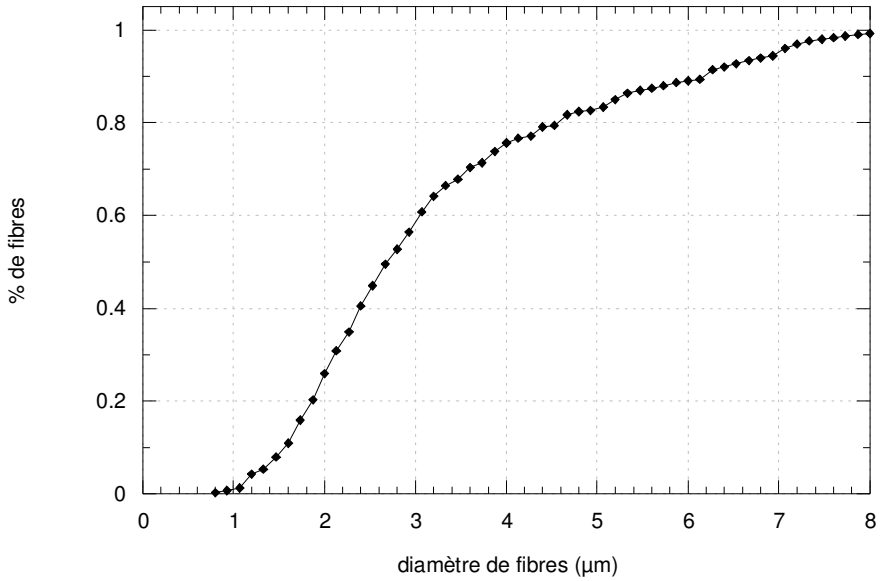


Figure A-17 : Distribution de taille des fibres du Bernard Dumas A320

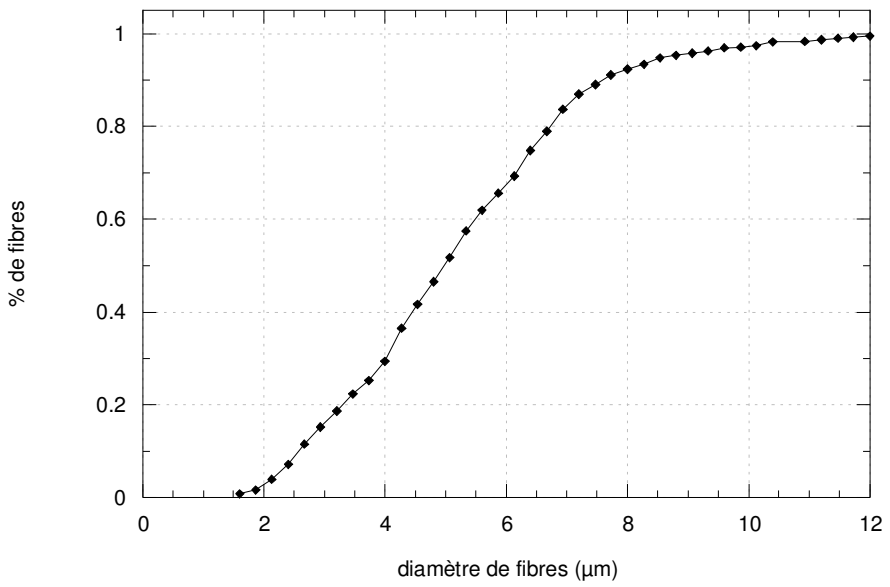


Figure A-18 : Distribution de taille des fibres du Lydall AX1923

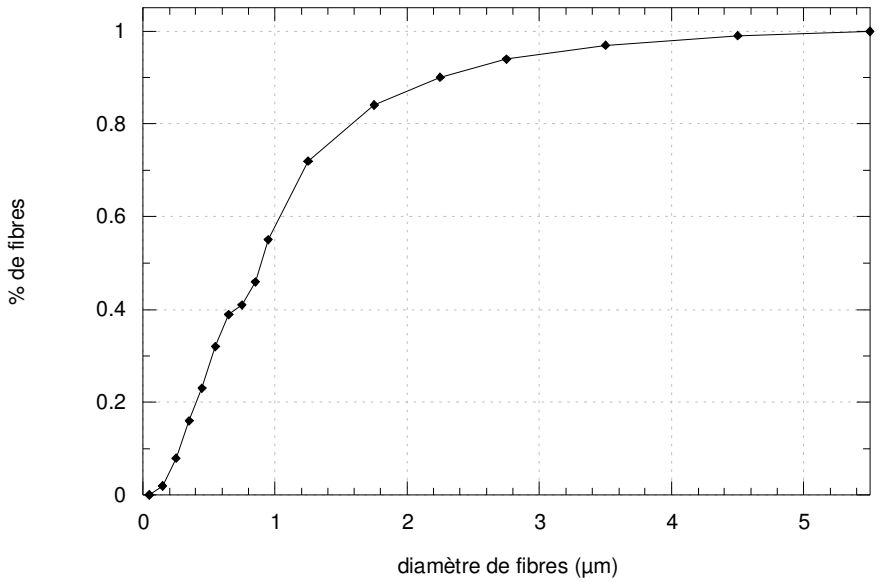


Figure A-19 : Distribution de taille des fibres du Bernard Dumas D309

Annexe L
–
Liste des Publications réalisées au cours de cette Thèse

MOURET G., CALLE-CHAZELET S., THOMAS D., BEMER D.
Capture des Nanoparticules par les Filtres à Fibres
Congrès Matériaux 2006 – Dijon, 13-17 Novembre 2006

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Pouvons-nous nous protéger des nanoparticules ?
Congrès Sciences et Technologies des Poudres 2007 – Albi, 23-25 Mai 2007

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D., ATTOUI M.
Filtration des Nanoparticules : un Problème de Taille ?
1ères Journées Filtration des Aérosols – Nancy, 7 et 8 Juin 2007

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Mesure de l'Efficacité des Filtres à Fibres vis-à-vis des Aérosols Nanométriques
Séminaire de la Société TSI – Paris, 26 Juin 2007

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Filtration of Ultrafine Aerosols: Small Particles, Many Questions
European Congress of Chemical Engineering 6 – Copenhague (Danemark)
16-20 Septembre 2007

MOURET G., CALLE-CHAZELET S., THOMAS D., BEMER D.
Can we protect ourselves and the environment from nanoparticles?
Congrès de la Société Française de Génie des Procédés 2007 – St-Etienne, 9-11 Octobre 2007

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Efficacité des Filtres vis-à-vis des Nanoparticules
120 ans de l'ENSIC – Nancy, 14 Décembre 2007 (*poster*)

THOMAS D., MOURET G., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Filtration des Nanoparticules : un Problème de Taille ?
Hygiène et Sécurité du Travail, ND2288, 211, 13-19 (2008)

MOURET G., CALLE-CHAZELET S., THOMAS D., BEMER D.
Nouveau Rebondissement dans l'Affaire du Rebond Thermique
23ème Congrès Français sur les Aérosols – Paris, 16-17 Janvier 2008

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Collecte of Nanoparticles on Fibrous Media: Filtration Efficiency and Clogging Effect
World Filtration Congress 10 – Leipzig (Allemagne), 14-18 Avril 2008

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Effect of a Pinhole inside Fibrous Filters challenged by Nanoparticles
European Aerosol Conference 2008 – Thessalonique (Grèce), 24-29 Août 2008 (*poster*)

MOURET G., CALLE-CHAZELET S., THOMAS D., BEMER D.
Nanoparticles Filtration by Leaked Fibrous Filters
Nanosafe'08 – Grenoble, 3-7 Novembre 2008 (*poster*)

MOURET G., THOMAS D., CALLE-CHAZELET S., BEMER D.
Incidence d'une Fuite sur les Performances des Médias Fibreux dans le Domaine Nanométrique
24ème Congrès Français sur les Aérosols – Paris, 14-15 Janvier 2009

Liste des Figures

INTRODUCTION 17

Figure 0-1 : Evolution des investissements gouvernementaux en Recherche et Développement liés aux nanosciences et nanotechnologies, depuis 1997 [Roco (2005)] 19
Figure 0-2 : Evolution du nombre de brevets déposés dans le secteur des nanotechnologies entre 1987 et 2003 [Huang et al. (2004)] 20
Figure 0-3 : Nanoparticules et échelle de taille 21
Figure 0-4 : Probabilité de dépôt d'un aérosol au sein de l'arbre pulmonaire [Witschger et Fabriès (2005)] 21

CHAPITRE I - REVUE BIBLIOGRAPHIQUE 25

Figure I-1 : Allure de l'efficacité d'un média fibreux selon le diamètre de particules filtré 27
Figure I-2 : Collecte d'une particule par impaction et interception 28
Figure I-3 : Collecte d'une particule par diffusion brownienne 28
Figure I-4 : Schéma d'un filtre à fibres 29
Figure I-5 : Evolution des coefficients de diffusion et de Cunningham en fonction du nombre de Knudsen de particule Kn_p et du diamètre de particules d_p, (T = 296,15 K et P = 101,3 kPa) 35
Figure I-6 : Efficacité unitaire de fibre η_d selon les modèles du tableau I-2 (d_f = 5 µm, α = 0,1 et U = 5 cm.s^{-1}) 35
Figure I-7 : Comparaison entre la vitesse moyenne d'impaction V_{im} et les vitesses critiques V_{cr} 38
Figure I-8 : Efficacité d'adhésion ε en fonction de R, en supposant une distribution de Maxwell-Boltzmann de la vitesse d'impaction des particules 39
Figure I-9 : Efficacité de collision η_d, d'adhésion ε et unitaire de fibre η en fonction du diamètre de particules d_p 40
Figure I-10 : Proportion de molécules de 0,5 nm à la surface d'une particule de diamètre d_p 41

CHAPITRE II - MATERIEL ET METHODES 49

Figure II-1 : Principe du banc d'essai MEFIANCE 51
Figure II-2 : Banc d'essai MEFIANCE installé au LSGC 52
Figure II-3 : Schéma de la chambre de génération du GFG-1000 (documentation Palas®) 53
Figure II-4 : Distribution de charge de particules entre 1 et 100 nm après passage au sein d'une source bipolaire 55
Figure II-5 : Sélection par un DMA d'une particule de mobilité électrique donnée 57
Figure II-6 : Mobilité électrique en fonction du diamètre de la particule et du nombre de charges portées 58
Figure II-7 : Schéma de fonctionnement du nano-DMA (réalisé à partir de la documentation constructeur) 59
Figure II-8 : Tension à appliquer au nano-DMA en fonction du diamètre de particules souhaité 59
Figure II-9 : CNC 3022A (d'après documentation constructeur) 61
Figure II-10 : Efficacité de comptage du CNC 3022A selon le diamètre de particules, à 1,5 L.min^{-1} 62
Figure II-11 : Modes de comptage du CNC 3022 62
Figure II-12 : Influence du mode de comptage du CNC sur la valeur de perméance mesurée 63
Figure II-13 : Fonction de transfert du nano-DMA pour différents diamètres de particule 64
Figure II-14 : Comparaison des valeurs obtenues pour h aux points donnés par Chen et al. (1998) 65
Figure II-15 : Comparaison des valeurs obtenues pour w aux points donnés par Chen et al. (1998) 65
Figure II-16 : Influence de l'argon contenu dans l'aérosol sur le sheath flowrate du nano-DMA 66
Figure II-17 : Montage utilisé pour la caractérisation des aérosols générés par le GFG-1000 67
Figure II-18 : Comparaison entre les concentrations en particules mesurées au CNC 3022A et les concentrations en particules effectives en amont de SMPS 68
Figure II-19 : Influence de la nature chimique des électrodes sur les caractéristiques de l'aérosol produit par le GFG-1000 69
Figure II-20 : Influence du gaz utilisé pour la production de nanoparticules 70

Figure II-21 : Rapport Γ en fonction de la vitesse de filtration U et du diamètre d'aérosol sélectionné [particules chargées (+1)] 71
Figure II-22 : Influence de Γ sur la mesure de perméance d'une grille (U = 15 cm.s^{-1}) 72
Figure II-23 : Efficacité de transport au sein de la conduite A 74
Figure II-24 : Vue schématique des dispositifs expérimentaux utilisés 75
Figure II-25 : Evolution de la concentration en particules le long du banc d'essai – U = 5 cm.s^{-1} 76
Figure II-26 : Valeur limite de perméance mesurable en-dessous de 30 nm 77

CHAPITRE III - EFFICACITE DES GRILLES 81

Figure III-1 : Motif de tissage des grilles utilisées 83
Figure III-2 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers de nos cinq grilles inox, à 5 cm.s^{-1} 84
Figure III-3 : Perméance au travers de la grille inox 40 en fonction de la nature chimique des aérosols-tests, globalement neutres électriquement, à 5 cm.s^{-1} 85
Figure III-4 : Efficacité unitaire de fibre expérimentale η_{exp} en fonction du nombre de Péclet Pe (grilles inox, 5 cm.s^{-1}, aérosols de cuivre globalement neutres) 85
Figure III-5 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers de la grille nylon 75, à 5 cm.s^{-1} 86
Figure III-6 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers de la grille fluortex 150, à 5 cm.s^{-1} 87
Figure III-7 : Comparaison de l'équation (III-3) aux perméances mesurées pour la grille fluortex 150 88
Figure III-8 : Perméance des 5 grilles inox vis-à-vis de particules de cuivre chargées positivement, à 5 cm.s^{-1} 89
Figure III-9 : Perméance des 5 grilles inox vis-à-vis de particules de cuivre chargées positivement, à 10 cm.s^{-1} 89
Figure III-10 : Perméance des 5 grilles inox vis-à-vis de particules de cuivre chargées positivement, à 15 cm.s^{-1} 90
Figure III-11 : Perméance de la grille inox 150 à 5 cm.s^{-1} selon l'état de charge des particules de cuivre 90
Figure III-12 : Influence de l'état de charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers de la grille nylon 75, à 5 cm.s^{-1} 91
Figure III-13 : Influence de l'état de charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers de la grille fluortex 150, à 5 cm.s^{-1} 91
Figure III-14 : Structure d'une molécule d'ETFE 92
Figure III-15 : Formes de résonance d'une fonction polyamide 92
Figure III-16 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de η_d théorique 93
Figure III-17 : Détermination de la densité linéique de charge λ pour les grilles nylon 75 et fluortex 150 94
Figure III-18 : Comparaison de l'équation (III-8) aux perméances mesurées pour les grilles nylon 75 et fluortex 150 dans le cas d'aérosols de cuivre ou de carbone chargés, à 5 cm.s^{-1} 95
Figure III-19 : Comparaison de l'équation (III-8) aux perméances mesurées pour 2 ou 3 grilles fluortex 150 95
Figure III-20 : Comparaison de l'équation (III-10) aux perméances mesurées pour la grille nylon 75 97
Figure III-21 : Comparaison de l'équation (III-10) aux perméances mesurées pour la grille fluortex 150 97
Figure III-22 : Comparaison du modèle de Cheng et Yeh (1980) aux valeurs de perméances $P(0)_{exp}$ calculées selon l'équation (III-11) pour des particules de cuivre entre 4 et 30 nm, à 5 cm.s^{-1} 98
Figure III-23 : Comparaison des valeurs de E_{ad} calculées à partir de (III-20) et (III-21) – A = 2,6 × 10^{-19} J 102
Figure III-24 : Diamètre critique $d_{p,X}$ en fonction de A 103
Figure III-25 : Rebond thermique pour des conditions opératoires les plus favorables possibles 104
Figure III-26 : Perméance au travers de la grille inox 25 à 5 cm.s^{-1} en considérant la possibilité d'un rebond thermique des particules, calculé à partir de l'équation (III-21) 105
Figure III-27 : Evolution du paramètre de Tabor en fonction du diamètre de particules et du travail d'adhésion du système acier-cuivre considéré 105
Figure III-28 : Evolution théorique de la perméance du système étudié par Shin et al. (2007) 106

CHAPITRE IV - EFFICACITE DES FILTRES NON-TISSES.....109

Figure IV-1 : Observation au microscope électronique à balayage du R2033 (à gauche) et de l'A320 (à droite) 111
Figure IV-2 : Observation au microscope électronique à balayage de l'AX1923 (à gauche) et du D309 (à droite) 112
Figure IV-3 : Perte de charge des médias en fonction de la vitesse d'écoulement U 112
Figure IV-4 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre R2033 simple et doublé, à 5 $cm.s^{-1}$ 113
Figure IV-5 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers des filtres A320 et AX1923, à 5 $cm.s^{-1}$ 113
Figure IV-6 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers des filtres R2033 (simple et doublé), A320 et AX1923, à 15 $cm.s^{-1}$ 114
Figure IV-7 : Efficacité unitaire de collecte expérimentale η_{exp} en fonction du nombre de Péclet 115
Figure IV-8 : Efficacité unitaire de collecte η_0 calculée pour des particules 0-chargées en fonction du nombre de Péclet 116
Figure IV-9 : Perméance théorique du filtre D309, à 5 $cm.s^{-1}$ 117
Figure IV-10 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance au travers du filtre R2033, à 5 $cm.s^{-1}$ 118
Figure IV-11 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance 118
Figure IV-12 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance 119
Figure IV-13 : Formes de résonance d'une fonction ester 119
Figure IV-14 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de η_0 pour le média R2033 120
Figure IV-15 : Détermination de la densité linéique de charge λ pour le média R2033 121
Figure IV-16 : Comparaison de la perméance de particules de cuivre monochargées au travers du filtre R2033 et des grilles nylon 75 et fluortex 150, à 5 $cm.s^{-1}$ (λ_{R2033} = 3,37 $pC.m^{-1}$; $\lambda_{nylon75}$ = 36,4 $pC.m^{-1}$; $\lambda_{fluortex150}$ = 306 $pC.m^{-1}$) 122
Figure IV-17 : Comparaison de la perméance de particules de cuivre non-chargées au travers du filtre R2033 et des grilles nylon 75 et fluortex 150, à 5 $cm.s^{-1}$ 123
Figure IV-18 : Perméances théoriques d'aérosols nanométriques non-chargés et globalement neutres en fonction de la densité de charges des fibres du média R2033, à 5 $cm.s^{-1}$ 124
Figure IV-19 : Perméances théoriques d'aérosols nanométriques monochargés en fonction de la densité de charges des fibres du média R2033, à 5 $cm.s^{-1}$ 124
Figure IV-20 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance 125
Figure IV-21 : Influence de la charge des particules de cuivre sur leur perméance 125
Figure IV-22 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{exp,|N|=1}$ en fonction de η_0 pour les filtres A320 et AX1923 126
Figure IV-23 : Efficacité unitaire de collecte $\eta_{0q,|N|=1}$ des filtres A320 et AX1923 en fonction de N_{0q} calculé pour ε_f = 2 et ε_f = 10 127
Figure IV-24 : Comparaison de l'équation (IV-19) aux perméances mesurées pour les filtres A320 et AX1923 128
Figure IV-25 : Comparaison de l'équation (IV-19) aux perméances mesurées pour les filtres A320 et AX1923 128
Figure IV-26 : Représentation schématique d'un filtre percé et notations 130
Figure IV-27 : Pourcentage de débit de fuite et ratio U_b/U_f selon le diamètre de fuite d_h pour le filtre AX1923 133
Figure IV-28 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre A320 intact et percé selon deux diamètres de perforation différents (à gauche : U_f = 5 $cm.s^{-1}$; à droite : U_f = 15 $cm.s^{-1}$) 135
Figure IV-29 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre AX1923 intact et percé selon trois diamètres de perforation différents (à gauche : U_f = 5 $cm.s^{-1}$; à droite : U_f = 15 $cm.s^{-1}$) 135
Figure IV-30 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers du filtre D309 percé selon deux diamètres de perforation différents (à gauche : U_f = 5 $cm.s^{-1}$; à droite : U_f = 15 $cm.s^{-1}$) 136
Figure IV-31 : Comparaison de la perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers de chacun des trois filtres testés (perforation de 1,32 mm et U_f = 15 $cm.s^{-1}$) 137
Figure IV-32 : Perméance d'un aérosol de cuivre globalement neutre de 6 nm au travers du filtre A320 en fonction de la vitesse de filtration U_f et du diamètre de la perforation réalisée au sein du média 138

Figure IV-33 : Perméance d'un aérosol de cuivre globalement neutre de 6 nm au travers du filtre AX1923 en fonction de la vitesse de filtration U_f et du diamètre de la perforation réalisée au sein du média 138
Figure IV-34 : Cartographie des régimes de filtration d'un média percé 139
Figure IV-35 : Evolution du paramètre adimensionnel φ en fonction du diamètre de particules d_p pour chacun des trois filtres à fibres testés, percés d'un trou de 1,32 mm, à 15 $cm.s^{-1}$ 140
Figure IV-36 : Evolution des points opératoires des trois filtres sur la cartographie des régimes (d_h = 1,32 mm, U_f = 15 $cm.s^{-1}$) 141

CHAPITRE V - EFFICACITE DES LITS GRANULAIRES 143

Figure V-1 : Efficacité unitaire de collecte η_d selon les différentes expressions du tableau V-1 en fonction du nombre de Péclet Pe ou du diamètre de particules d_p (Re = 25, U ≈ 10 $cm.s^{-1}$) 146
Figure V-2 : Efficacité unitaire de collecte expérimentale η_{exp} des lits de billes d'acier vis-à-vis d'aérosols de cuivre globalement neutres entre 3 et 40 nm, à 5 et 15 $cm.s^{-1}$ 147
Figure V-3 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers des lits de billes d'acier, à 5 $cm.s^{-1}$ 148
Figure V-4 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers des lits de billes d'acier, à 15 $cm.s^{-1}$ 149
Figure V-5 : Perméance d'aérosols de cuivre ou de carbone globalement neutres au travers des deux lits de zéolithe testés, à 5 $cm.s^{-1}$ 150
Figure V-6 : Perméance d'aérosols de cuivre globalement neutres au travers des deux lits de zéolithe testés, à 15 $cm.s^{-1}$ 150

Liste des Tableaux

CHAPITRE I - REVUE BIBLIOGRAPHIQUE 25

Tableau I-1: Expression du facteur hydrodynamique H selon différents auteurs..... 31
Tableau I-2 : Expressions de η_d selon différents auteurs..... 32
Tableau I-3 : Valeurs des constantes a, b et c de la relation (I-16)..... 34
Tableau I-4 : Liste des constantes élastiques pour divers matériaux courants, ... 38
Tableau I-5 : Principales études expérimentales de filtration des nanoparticules menées jusqu'en 2004 44
Tableau I-6 : Etudes expérimentales de filtration des nanoparticules publiées depuis 2005 45
Tableau I-7 : Expressions de l'efficacité unitaire de collecte par effets électrostatiques $\eta_{élec}$..... 46

CHAPITRE II - MATERIEL ET METHODES 49

Tableau II-1 : Influence de P_{Ar}, P_{air} et f sur les caractéristiques de l'aérosol produit par le GFG-1000 54
Tableau II-2 : Coefficients $a_i(N)$ de l'équation (II-2)..... 55

CHAPITRE III - EFFICACITE DES GRILLES.....81

Tableau III-1 : Caractéristiques géométriques des grilles testées..... 83
Tableau III-2 : Expressions de η et P selon le cas rencontré..... 99
Tableau III-3 : Ordre de grandeur de la constante d'Hamaker A pour différents systèmes, d'après Churaev (2000)..... 100

CHAPITRE IV - EFFICACITE DES FILTRES NON-TISSES.....109

Tableau IV-1 : Caractéristiques géométriques des filtres non-tissés utilisés [voir aussi Frising (2004)] 111
Tableau IV-2 : Expressions de η et P selon le cas rencontré 129
Tableau IV-3 : Valeurs des résistances à l'écoulement K et K' 132
Tableau IV-4 : Evolution de Φ_Q et Φ_P en fonction de d_h, U_f et d_p..... 140

CHAPITRE V - EFFICACITE DES LITS GRANULAIRES 143

Tableau V-1 : Expressions de l'efficacité unitaire de collecte par diffusion selon différents auteurs 146

INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :
Monsieur Denis BOULAUD, Directeur Scientifique, IRSN, Le Vesinet

Monsieur Yves GONTHIER, Professeur, Université de Savoie, Polytech'Savoie, Le Bourget du Lac

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur MOURET Guillaume

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Etude de la filtration des aérosols nanométriques"

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : **« Génie des procédés et des produits »**

Fait à Vandoeuvre, le 14 octobre 2008
Le Président de l'I.N.P.L.,
F. LAURENT

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

TEL. 33/03.83.59.59.59
FAX. 33/03.83.59.59.55