



HAL
open science

Mise au point d'un dispositif de collecte d'aérosols nanométriques pour l'analyse biologique

Ernest Galbrun, Alain Glière, Yves Fouillet, Jean-Luc Achard, Frédéric
Rouillon, Christine Péponnet

► **To cite this version:**

Ernest Galbrun, Alain Glière, Yves Fouillet, Jean-Luc Achard, Frédéric Rouillon, et al.. Mise au point d'un dispositif de collecte d'aérosols nanométriques pour l'analyse biologique. CFM 2007 - 18ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2007, Grenoble, France. hal-00267663

HAL Id: hal-00267663

<https://hal.science/hal-00267663v1>

Submitted on 24 Mar 2020

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.

Mise au point d'un système de collecte d'aérosols nanométriques pour l'analyse biologique

Ernest Galbrun¹, Alain Glière¹, Yves Fouillet¹, Jean-Luc Achard³, Florence Rouillon²,
Christine Péponnet¹

¹CEA Grenoble : Département pour la Recherche Technologique – Léti
17, rue des Martyrs 38054 Grenoble Cedex 9

²CEA Grenoble : Département pour la Recherche Technologique – Liten

³INPG - Laboratoire des Écoulements Géophysiques et Industriels
ernest.galbrun@cea.fr

Résumé :

Nous présentons ici une nouvelle méthode de collecte des aérosols, pouvant capturer efficacement et indépendamment de leur taille toutes sortes d'aérosols, dont la taille peut varier de quelques dizaines de nanomètre à quelques microns. Le système de collecte consiste en un électrofiltre standard, dans lequel une petite quantité de vapeur d'eau est injectée au cœur de l'écoulement d'air, ce qui permet d'augmenter significativement le rendement pour la collecte des particules nanométriques. Cette méthode a l'intérêt majeur de présenter un bon rendement pour une gamme très étendue de taille de particules (20 nm à 2 µm), et de concentrer les particules collectées dans un petit volume d'eau, particulièrement adapté à une analyse ultérieure par un microsystème.

Abstract :

We present a new concept for an airborne particle collector, capable of capturing efficiently and independently of size, any kind of aerosol ranging from a few tens of nanometres to a few microns. The collection device consists in a standard electrostatic precipitator, where the particles are charged via an electrical corona discharge and collected subsequently due to the electrostatic forces. In addition, a small amount of water vapour is injected in the incoming air flow improving greatly the yield for the collection of nanoscale particles. This method has the valuable advantage of having a very good yield for a wide range of particle size (20 nm to 2 µm), and of concentrating the particles in a very small volume of water, particularly adapted to continuous flow monitoring by fluidic microsystems.

Mots-clefs : aérosols ; électrofiltration ; microsystèmes

1 Introduction

La détection et l'analyse des particules présentes dans l'air ambiant constituent une préoccupation actuelle majeure, que ce soit pour des problématiques de sécurité (détection d'attaques biologiques), d'environnement avec la présence difficilement quantifiable dans l'air ambiant de nanoparticules produites par l'activité humaine (une nouvelle gamme de nanoparticules étant susceptible d'être présente suite à l'essor des nanotechnologies), ou de santé avec un besoin évident de protéger les populations des agents pathogènes aéroportés (légielles, grippe, etc.). Les systèmes de collecte disponibles à l'heure actuelle ne répondent pas à ces besoins, puisqu'ils présentent soit un taux de collecte trop faible pour les petites particules, ou sont trop encombrants et consomment trop d'énergie pour permettre une utilisation nomade, ou encore ne sont capables de traiter que des débits d'air très petits. C'est pourquoi la mise au point d'un système de collecte permettant une connexion directe aux microsystèmes d'analyse est cruciale. Le principe de filtration possédant les meilleures performances à l'heure actuelle à débit élevé sont ceux fondés sur le principe de collecte électrostatique [1-4], c'est pourquoi le dispositif présenté ici est fondé sur un tel système, avec pour objectif d'en adapter

les caractéristiques pour l'analyse d'organismes vivants, y compris de petite taille (en dessous de 100 nm).

2 Principe de fonctionnement d'un électrofiltre

Le principe sur lequel repose le prototype mis au point est celui d'un électrofiltre standard à un étage [5]. L'aérosol est amené à proximité d'une électrode pointue portée à haute tension, produisant une décharge électrique. Le champ électrique élevé autour de la pointe de l'électrode génère une succession rapide d'avalanches électriques localisées dans le voisinage de la pointe, et produisant un courant électrique continu. C'est ce phénomène bien connu aujourd'hui, qui est appelé décharge couronne. Les mécanismes permettant la décharge couronnent diffèrent selon que l'électrode de décharge est portée à un potentiel positif (voir à ce sujet une description détaillée des phénomènes conduisant à la décharge couronne positive par Trichel [6] ou Morrow [7]) ou négative (une description des mécanismes pour la décharge couronne négative est donnée par Morrow [8]). Les décharges négatives sont généralement plus importantes, à tension équivalente, que les décharges positives, c'est pourquoi elles sont utilisées le plus souvent dans les applications nécessitant une décharge couronne, en particulier les électrofiltres. Nous utilisons exclusivement une décharge négative dans les travaux exposés ici.

Les ions positifs générés dans la zone de décharge sont rapidement amenés par la force électrostatique vers l'électrode de décharge. En revanche, les électrons créés de la même façon réagissent très rapidement avec les molécules du gaz ambiant pour former des ions négatifs, eux même étant conduits par la force électrostatique loin de l'électrode de décharge, vers l'électrode de masse. La traversée de la zone séparant l'électrode de décharge de l'électrode de masse par ces ions constitue ce qui est appelé le vent ionique. Les particules qui traversent la zone de vent ioniques sont alors susceptibles de s'associer à certains de ces ions et ainsi d'acquérir une charge électrique. Le processus de charge des particules est constitué de deux phénomènes distincts. Les ions peuvent rentrer en collision avec les particules qui se trouvent sur leur trajet, ou ils peuvent être amenés au contact des particules suite au mouvement brownien auquel ils sont soumis. Les deux mécanismes se complètent pour donner une charge totale à la particule. La particule est ensuite entraînée par la force électrostatique vers l'électrode de masse où elle peut aisément être récoltée.

3 Avantages et inconvénients du système d'électrofiltration pour l'analyse des aérosols

L'atout essentiel des électrofiltres dans le domaine de l'analyse de particules aéroportées est que ce sont les seuls types de filtres ayant une bonne efficacité de collecte pour les particules sub-microniques, y compris pour des débits d'air élevés, tout en permettant la récupération après collecte des particules. Les électrofiltres sont utilisés couramment pour nettoyer l'air de l'essentiel de ses particules en sortie d'usines polluantes. Cependant, quelques problèmes se posent dans le cas qui nous intéresse.

Tout d'abord, le taux de collecte d'un électrofiltre typique d'effondre lorsque les particules deviennent trop petites, typiquement entre 200 nm et 400 nm, taille en dessous de laquelle la charge acquise par la convection des ions sur les particules décroît fortement, et la charge acquise par diffusion n'est pas suffisante pour conférer la mobilité ionique nécessaire à la collecte des particules. En dessous de 100 nm, le rendement de collecte chute à nouveau considérablement puisque les particules n'acquièrent plus aucune charge. Or, de nombreux agents biologiques d'intérêt de taille correspondant à ces zones d'intérêt, en particulier plus petits que 100 nm peuvent être présents dans l'air (voir à ce propos, une liste proposée par l'université de Pennsylvanie [9]).

En outre, les particules collectées par les électrofiltres classiques s'accumulent sur l'électrode de masse, et un système mécanique est nécessaire pour les détacher de la surface et les récolter. Ainsi, les particules sont collectées à des temps définis, à une fréquence typique de

quelques heures. Cela peut poser un problème si le besoin d'analyse de l'air nécessite une réponse en temps réel.

Enfin, les électrofiltres utilisés dans l'industrie sont des équipements très encombrants et ils consomment une puissance électrique et, le cas échéant, une quantité d'eau totalement incompatibles avec l'utilisation nomade qui est un point important du cahier des charges du système conçu ici.

4 Amélioration du système par l'ajout de vapeur d'eau

Le prototype qui a été conçu et qui est présenté ici, visant à combler les lacunes que présentent les solutions actuelles, est composé d'une chambre de décharge cylindrique dans laquelle se déroulent simultanément les deux étapes de charge des particules et de collecte électrostatique, ceci augmentant la compacité du système, ce qui est souhaitable si l'on souhaite avoir un dispositif mobile.

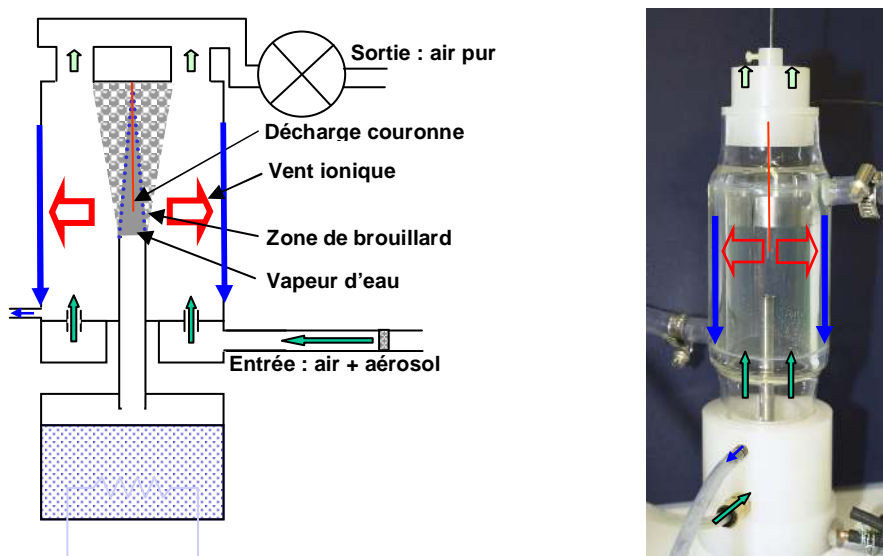


Figure 1 : Principe de fonctionnement (à gauche) et photographie du prototype réalisé (à droite).

En complément de ce système, une petite quantité de vapeur d'eau légèrement surchauffée (1L/min de vapeur à 120°C et pression atmosphérique) est injectée directement au cœur de l'écoulement d'air, à proximité de la pointe de décharge couronne (voir Figure 1). De cette façon, la vapeur d'eau se mélangeant à l'air est rapidement refroidie, et l'eau condense sous forme de gouttelettes dans la zone de mélange. Ces gouttelettes se forment sur les sites de nucléation constitués par les particules solides [10], causant un accroissement artificiel du diamètre apparent des particules pour atteindre très rapidement des tailles supérieures au micron [11-14], qui sont ainsi beaucoup plus facilement collectées par la force électrostatique.

Les gouttelettes d'eau encapsulant les particules sont donc chargées et entraînées par la force électrostatique vers l'électrode de masse, entrant éventuellement en collision avec les particules se trouvant sur leur chemin, ce qui ajoute un troisième mécanisme de collecte des particules (voir Figure 2). En outre, l'encapsulation des particules dans les gouttelettes d'eau est susceptible d'améliorer nettement la viabilité des agents biologique collectés, ce qui est essentiel puisque la décharge est réputée pour sa toxicité à l'encontre des bactéries [15, 16].

Une fois les particules et les gouttelettes collectées sur la paroi refroidie, l'eau s'y accumule, s'écoule, et est facilement récupérée dans la partie inférieure de la cellule de collecte.

Les trois mécanismes de collecte

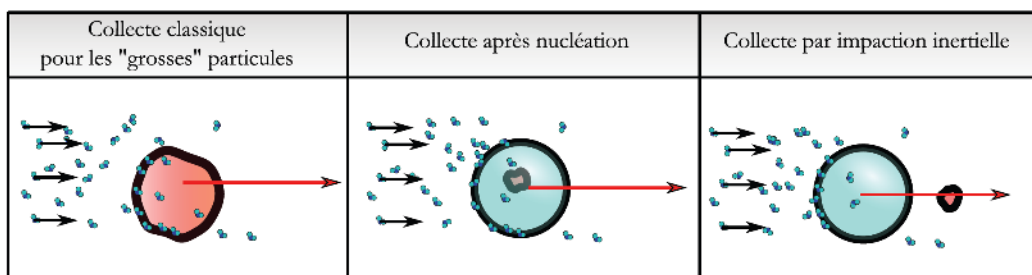


Figure 2 : Le rendement de collecte des particules est amélioré par l'existence de deux mécanismes de collecte supplémentaires : la collecte après nucléation de gouttelette autour des particules et la collecte par impaction inertielle des gouttelettes sur les particules

5 Dispositif expérimental et protocole de mesure du rendement de collecte

Le protocole de mesure expérimental consiste dans un premier temps en la génération d'un aérosol fluorescent calibré, mélangé à l'air ambiant. Cet aérosol est créé en nébulisant une solution de fluorescéine, ou une solution contenant des billes fluorescentes de taille connue. La nébulisation est effectuée en utilisant soit un nébuliseur pneumatique, consistant à faire passer la solution nébulisée sous pression dans une buse de diamètre très fin, ou un nébuliseur à ultrasons, dans lequel la production d'ondes acoustiques de surfaces d'amplitude suffisantes conduit à la désintégration des vagues en gouttelettes (pour une description détaillée des deux mécanismes, voir [17]). Les gouttelettes ainsi créées sont ensuite séchées avec un courant d'air comprimé sec, afin que ne reste dans l'air que le résidu de séchage : un amas de fluorescéine nanométrique unimodal polydispersé (centré entre 50 et 200 nm selon la concentration de la solution mère, avec un écart-type de 20 à 40 nm), ou les billes fluorescentes.

Le flux d'air principal est généré en créant une dépression en aval du système de collecte à l'aide d'une pompe à effet venturi fonctionnant à l'air comprimé, dont le débit peut atteindre 30L/min. Une fraction χ de l'air injecté est prélevée en amont du système de collecte à l'aide d'une pompe à palettes et passe à travers un filtre à manche, ce qui permet d'avoir accès à la quantité totale de particules fluorescentes injectées qui vaut $n_1 = [(1 - \chi)/\chi]n_0$, n_0 étant la quantité totale de particules fluorescentes collectées sur le filtre. Une fois la collecte terminée, une quantité n_2 de particules est récupérée sur la surface de l'électrode de collecte, et, lorsque la vapeur d'eau est utilisée, une quantité n_3 est récupérée dans un flacon servant à recueillir l'eau s'écoulant en surface de l'électrode de collecte.

Le rendement de collecte est ensuite calculé en faisant le rapport de la quantité de particules recueillie divisée par la quantité de particules introduites dans la cellule de collecte :

$$\eta = \frac{n_2 + n_3}{n_1} \quad (1)$$

Les expériences utilisant la vapeur d'eau mettent en oeuvre un système de refroidissement à eau pour maintenir les parois du dispositif froides et éviter que l'eau qui s'y accumule ne s'évapore.

A la fin de chaque expérience, la quantité de fluorescence prélevée dans le filtre amont et collectée par le système de collecte est mesurée à l'aide d'un fluorimètre après dilution dans un volume d'eau connu. L'imprécision des mesures de quantité de fluorescence est en dessous du pourcent et la répétabilité des mesures de rendement est de l'ordre de 2 à 3 %. Le rendement est calculé en faisant le rapport entre la quantité de particules fluorescentes collectées et la quantité totale injectée, elle-même déduite de la mesure sur le filtre amont.

6 Résultats

Le rendement de collecte du prototype réalisé a été mesuré en faisant varier la tension de décharge, la taille des particules collectées, le débit d'air traité et la concentration de particules dans l'air, et en comparant les résultats en présence ou non de vapeur d'eau.

Le graphique de la Figure 3 montre le résultat des expériences de mesure du rendement en fonction du débit d'air traité, pour la collecte de particules de 50 nm. On y observe que, comme il était prévisible, le rendement chute fortement lorsque le débit devient conséquent. L'ajout de vapeur d'eau semble améliorer le processus de collecte puisque, avec l'ajout de la vapeur d'eau, le rendement reste très bon (environ 80%) même pour le débit maximal atteignable par notre dispositif expérimental, de 30 L/min. L'augmentation du rendement liée à l'ajout de vapeur d'eau est également très significative dans l'ensemble des essais qui ont été faits. Ces résultats sont synthétisés dans la Figure 4, donnant le résultat du rendement de collecte en fonction de la tension de décharge et de la taille des particules collectées.

Des expériences ont également permis de mettre en évidence le fait que le rendement ne dépend pas, dans la gamme accessible par l'expérience (de 10^{-11} à 10^{-9} kg/L), de la concentration en aérosol de l'air traité.

7 Conclusion

Les résultats obtenus à ce jour sont très prometteurs. Ils montrent que la combinaison d'un système d'électrofiltration avec l'ajout d'une faible quantité de vapeur d'eau améliore très sensiblement l'efficacité du dispositif, permettant la collecte de la quasi-totalité des particules dont la taille se situe dans la gamme qui nous intéresse, de quelques dizaines de nanomètres à plusieurs microns. Cette collecte, qui nécessite qu'un faible apport énergétique électrique et une quantité d'eau très réduite, autorise une utilisation nomade, et permet de récolter en temps réel les particules présentes dans l'air. Par ailleurs, l'encapsulation des particules dans les gouttelettes puis leur acheminement vers la sortie de la cellule de collecte dans une faible quantité d'eau, permet une connexion naturelle avec les microsystèmes d'analyse existants ou en cours de développement.

Des expériences supplémentaires sont désormais nécessaires pour s'assurer de la viabilité des agents biologiques collectés par cette méthode et, le cas échéant, pour valider l'hypothèse selon laquelle l'encapsulation des particules dans des gouttelettes d'eau les préserve des effets toxiques de la décharge couronne. En effet de nombreux mécanismes chimiques sont susceptibles de causer des dégâts aux organismes vivants collectés par ce système, notamment à travers l'éventuelle formation de composés chimiques très oxydants tels que l'ozone O_3 , le peroxyde d'oxygène $\bullet OH$ ou les ions superoxydes O_2^- .

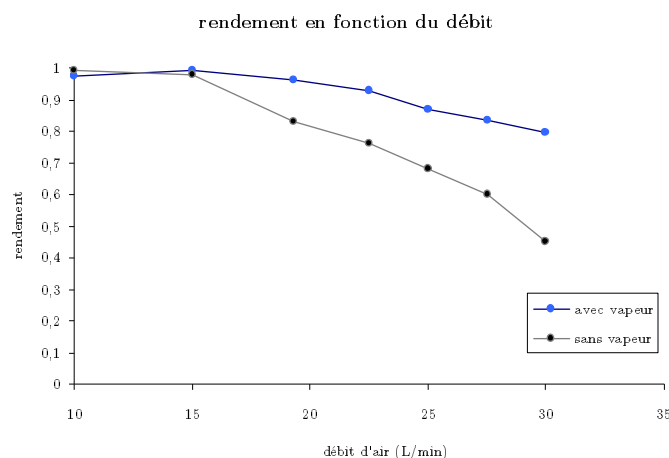


Figure 3: courbe de rendement en fonction du débit, pour des particules de 50 nm et une tension de 8 kV

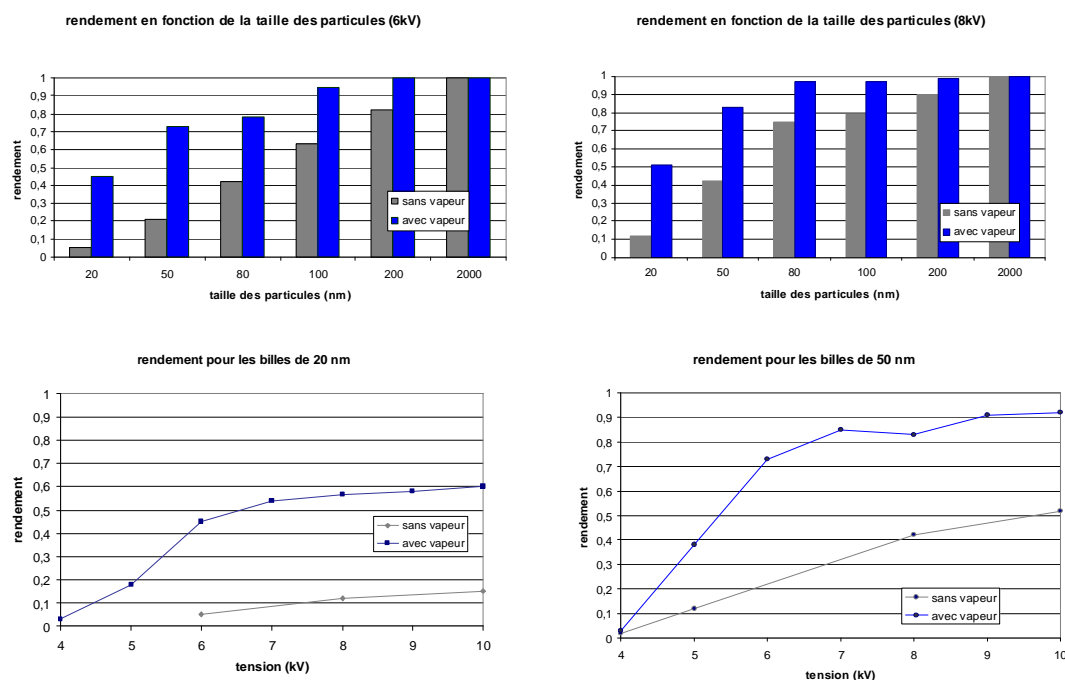


Figure 4 : Résultats des mesures de rendement en fonction de la taille des particules (en haut), et de la tension de décharge (en bas). La première série d'expérience a été faite avec une tension de décharge de 6 kV, et un débit d'air de 30 L/min. Dans toutes ces expériences, le débit d'air traité est de 30L/min, et, le cas échéant, le débit de vapeur d'eau est de 1 L/min.

Références

1. Borra, J.-P., *Nucleation and aerosol processing in atmospheric pressure electrical discharges: powders production, coatings and filtration*. Journal of Physics D: Applied Physics, 2006. 39: p. R19-R54.
2. Botvinnik, I. and C.E. Taylor. *High efficiency portable electrostatic air cleaner with insulated electrodes*. in *ESA/IEJ/IEEE-IAS/SFE Joint Conference on Electrostatics 2006*, 2006. Berkeley.
3. Kim, S.H. and K.W. Lee, *Experimental study of electrostatic precipitator performance and comparison with existing theoretical prediction models*. Journal of Electrostatics, 1999. 48: p. 3-25.
4. Mainelis, G., et al., *Collection of airborne microorganisms by a new electrostatic precipitator*. Journal of Aerosol Science, 2002. 33(10): p. 1417.
5. Chang, J.-S., A.J. Kelly, and J.M. Crowley, *Handbook of Electrostatic Processes*. 1995.
6. Trichel, G.W., *The Mechanism of the Positive Point-to-Plane Corona in Air at Atmospheric Pressure*. Physical Review, 1939. 55: p. 382-394.
7. Morrow, R., *The theory of positive glow corona*. Journal of Physics D: Applied Physics, 1997. 30: p. 3099-3114.
8. Morrow, R., *Theory of negative corona in oxygen*. Physical Review A, 1985. 32(3): p. 1799-1809.
9. *Airborne pathogen database*. 2006 31/08/2006 Available from: <http://www.engr.psu.edu/ae/ieec/abe/database.asp>.
10. Hirth, J.P. and G.M. Pound, *Evaporation, Nucleation and growth kinetics*. Progress in Materials science. 1963: Pergamon press. 177.
11. Ramabhadran, T.E., T.W. Peterson, and J.H. Seinfeld, *Dynamics of aerosol coagulation and condensation*. AIChE Journal, 1976. 22(5): p. 840-851.
12. Vesala, T. and M. Kulmala, *Comparison of uncoupled, film theoretical and exact solutions for binary droplet evaporation and condensation*. Physica A, 1993. 192: p. 107-123.
13. Carstens, J.C., *Drop growth in the atmosphere by condensation: application to cloud physics*, in *Advances in colloid and interface science*. 1979, Elsevier scientific publishing company: Amsterdam. p. 285-314.
14. Rose, J.W., *Dropwise condensation theory*. International Journal of Heat and Mass Transfer, 1980. 24: p. 191-194.
15. Sigmund, R.S., B. Kurdelova, and M. Kurdel, *Action of corona discharges on bacteria and spores*. Czechoslovak Journal of Physics, 1999. 49(3): p. 405-420.
16. Goldstein, N.I., R.N. Goldstein, and M.N. Merzlyak, *Negative air ions as a source of superoxide*. International Journal of Biometeorology, 1992. 36(2): p. 112-118.
17. Lefebvre, A.H., *Atomization and sprays*. Combustion (Hemisphere publishing corporation). 1989: Taylor & Francis.