

Avant-propos

Une autre approche pour la détermination de la masse volumique effective d'agglomérats consiste à mesurer la masse de particules de diamètre connu (Mc Murry *et al.* 2002). Bien que plus chronophage que la précédente, cette méthode est plus facile à mettre en œuvre et ne nécessite pas d'hypothèse particulière. Elle consiste en la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA puis en la mesure de leur masse *via* un analyseur de masse (APM¹) développé par (Ehara *et al.* 1996). Pour les particules non poreuses, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules sans passer par une étape d'échantillonnage avant analyse au pycnomètre. Pour les particules nanostructurées, bien que la masse volumique effective ne puisse être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée récemment pour déterminer la masse volumique effective de particules diesel (Shapiro *et al.* 2012 ; Khalizov *et al.* 2012 ; Ghazi *et al.* 2013 ; Rissler *et al.* 2013), de nanotubes de carbone (Kim *et al.* 2009) ou encore de diverses particules métalliques (Charvet *et al.* 2014).

Une autre approche pour la détermination de la masse volumique effective d'agglomérats consiste à mesurer la masse de particules de diamètre connu (Mc Murry *et al.* 2002). Bien que plus chronophage que la précédente, cette méthode est plus facile à mettre en œuvre et ne nécessite pas d'hypothèse particulière. Elle consiste en la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA puis en la mesure de leur masse *via* un analyseur de masse (APM²) développé par (Ehara *et al.* 1996). Pour les particules non poreuses, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules sans passer par une étape d'échantillonnage avant analyse au pycnomètre. Pour les particules nanostructurées, bien que la masse

1. APM : *Aerosol Particle Mass analyzer*.

2. APM : *Aerosol Particle Mass analyzer*.

volumique effective ne puisse être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée récemment pour déterminer la masse volumique effective de particules diesel (Shapiro *et al.* 2012 ; Khalizov *et al.* 2012 ; Ghazi *et al.* 2013 ; Rissler *et al.* 2013), de nanotubes de carbone (Kim *et al.* 2009) ou encore de diverses particules métalliques (Charvet *et al.* 2014).

REMARQUE. Une autre approche pour la détermination de la masse volumique effective d'agglomérats consiste à mesurer la masse de particules de diamètre connu (Mc Murry *et al.* 2002). Bien que plus chronophage que la précédente, cette méthode est plus facile à mettre en œuvre et ne nécessite pas d'hypothèse particulière. Elle consiste en la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA puis en la mesure de leur masse *via* un analyseur de masse (APM³) développé par (Ehara *et al.* 1996). Pour les particules non poreuses, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules sans passer par une étape d'échantillonnage avant analyse au pycnomètre. Pour les particules nanostructurées, bien que la masse volumique effective ne puisse être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée récemment pour déterminer la masse volumique effective de particules diesel (Shapiro *et al.* 2012 ; Khalizov *et al.* 2012 ; Ghazi *et al.* 2013 ; Rissler *et al.* 2013), de nanotubes de carbone (Kim *et al.* 2009) ou encore de diverses particules métalliques (Charvet *et al.* 2014).

Une autre approche pour la détermination de la masse volumique effective d'agglomérats consiste à mesurer la masse de particules de diamètre connu (Mc Murry *et al.* 2002). Bien que plus chronophage que la précédente, cette méthode est plus facile à mettre en œuvre et ne nécessite pas d'hypothèse particulière. Elle consiste en la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA puis en la mesure de leur masse *via* un analyseur de masse (APM⁴) développé par (Ehara *et al.* 1996). Pour les particules non poreuses, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules sans passer par une étape d'échantillonnage avant analyse au pycnomètre. Pour les particules nanostructurées, bien que la masse volumique effective ne puisse être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée récemment pour déterminer la masse volumique effective de particules diesel (Shapiro *et al.* 2012 ; Khalizov *et al.* 2012 ; Ghazi *et al.* 2013 ; Rissler *et al.* 2013), de nanotubes de carbone (Kim *et al.* 2009) ou encore de diverses particules métalliques (Charvet *et al.* 2014).

THÉORÈME.— Une autre approche pour la détermination de la masse volumique effective d'agglomérats consiste à mesurer la masse de particules de diamètre connu (Mc Murry *et al.* 2002). Bien que plus chronophage que la précédente, cette méthode est

4. APM : *Aerosol Particle Mass analyzer*.

plus facile à mettre en œuvre et ne nécessite pas d'hypothèse particulière. Elle consiste en la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA puis en la mesure de leur masse *via* un analyseur de masse (APM⁵) développé par (Ehara *et al.* 1996). Pour les particules non poreuses, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules sans passer par une étape d'échantillonnage avant analyse au pycnomètre. Pour les particules nanostructurées, bien que la masse volumique effective ne puisse être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée récemment pour déterminer la masse volumique effective de particules diesel (Shapiro *et al.* 2012 ; Khalizov *et al.* 2012 ; Ghazi *et al.* 2013 ; Rissler *et al.* 2013), de nanotubes de carbone (Kim *et al.* 2009)) ou encore de diverses particules métalliques (Charvet *et al.* 2014).

5. APM : *Aerosol Particle Mass analyzer*.

PARTIE 1

Titre de la partie

1

Généralités sur les aérosols

Dominique THOMAS¹ et Augustin CHARVET²

¹*Affiliation*

²*Affiliation*

Le terme aérosol apparaît vers 1920 pour désigner la suspension, dans un milieu gazeux, de particules solides ou liquides présentant une vitesse de chute négligeable. Dans l'air et dans les conditions normales, cela correspond à des particules de taille inférieure à $100\ \mu m$. La figure 1.1 donne la dimension de quelques impuretés habituellement présentes dans l'air et quelques éléments de comparaison. La notion d'aérosol inclut à la fois les particules et le gaz dans lequel elles se trouvent en suspension, mais par abus de langage, le terme aérosol est souvent utilisé pour désigner les particules seules.

Dans le domaine de la surveillance de la qualité de l'air, les particules en suspension dans l'air sont réparties en différentes classes PM_x (PM : *Particulate Matter*) selon leur diamètre aérodynamique x (voir section 1.4.5) :

- PM 10 : particules de diamètre aérodynamique inférieur à $10\ \mu m$;
- PM 2,5 : particules de diamètre aérodynamique inférieur à $2,5\ \mu m$ appelées également particules fines ;
- PM 1 : particules de diamètre aérodynamique inférieur à $1\ \mu m$ appelées également particules très fines ;
- PM 0,1 : particules de diamètre aérodynamique inférieur à $0,1\ \mu m$ appelées également particules ultrafines ou nanoparticules.

La filtration des aérosols,

coordonné par Dominique THOMAS et Augustin CHARVET. © ISTE Editions 2019.

1.1. Caractéristiques du milieu gazeux

Il semble évident que le milieu gazeux joue un rôle important sur le comportement des particules. Il va agir pour limiter leur mouvement aléatoire ou pour freiner leur dérive sous l'effet d'un champ de force. Par ailleurs, compte tenu de la large répartition granulométrique des particules, s'étalant du domaine moléculaire au dixième de millimètre, le milieu porteur doit être considéré à la fois d'un point de vue microscopique et macroscopique. En d'autres termes, le milieu gazeux peut être étudié en faisant intervenir la théorie cinétique des gaz ou la dynamique des fluides.

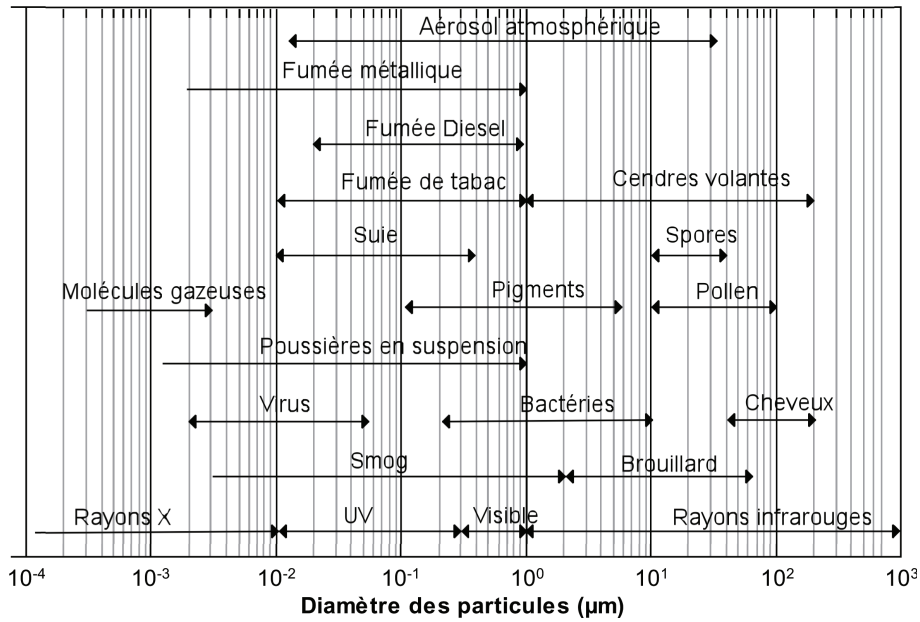


Figure 1.1. Ordre de grandeur de taille de quelques particules

1.1.1. Libre parcours moyen

Un gaz est un milieu discontinu constitué par un ensemble de molécules en mouvement incessant. La distance moyenne que parcourt une molécule entre deux collisions définit le libre parcours moyen λ_g donné par la relation suivante :

$$\lambda_g = \frac{1}{\sqrt{2} n_{mol} \pi d_{mol}^2} \quad [1.1]$$

avec d_{mol} , le diamètre d'une molécule et n_{mol} , le nombre de molécules par unité de volume.

Pour des molécules d'air, (Willeke 1976) propose la relation empirique suivante :

$$\lambda_g = \lambda_0 \frac{T}{T_0} \frac{P_0}{P} \frac{1 + \frac{110,4}{T_0}}{1 + \frac{110,4}{T}} \quad [1.2]$$

avec $\lambda_0 = 66,5 \cdot 10^{-9} \text{ m}$, $P_0 = 101325 \text{ Pa}$ et $T_0 = 293,15 \text{ K}$.

Cette relation, très largement employée, permet de déterminer le libre parcours moyen des molécules d'air dans différentes conditions de température et de pression. Il augmente lorsque la température augmente ou lorsque la pression baisse (figure 1.2). Ceci est lié à l'expansion volumique des gaz qui induit une diminution de la concentration en molécules de gaz et par conséquent l'augmentation de la distance moyenne à parcourir entre deux collisions. A une température de 20°C et sous une pression de $1,013 \text{ bar}$, le libre parcours moyen de l'air est alors de $66,4 \text{ nm}$.

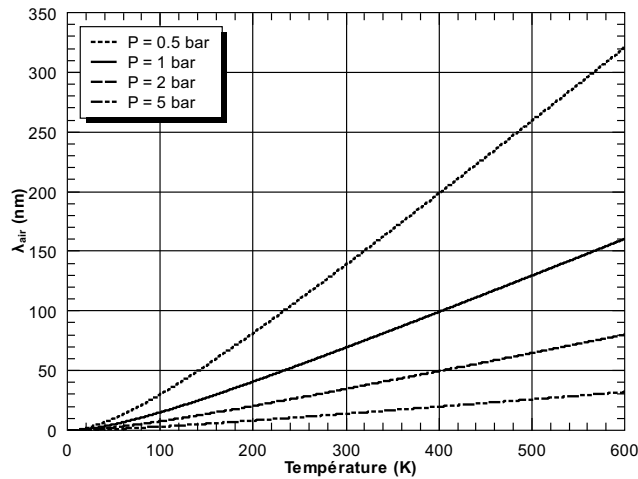


Figure 1.2. Libre parcours moyen de l'air en fonction de la température et de la pression

1.1.2. Nombre de Knudsen

Lorsque la dimension des particules est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des molécules du gaz porteur, le milieu ne peut plus être considéré

comme continu. Le nombre adimensionnel de Knudsen (Kn), défini par le rapport du libre parcours moyen des molécules du gaz porteur et du rayon des particules ($d_p/2$) [1.3], permet de caractériser la continuité ou non du milieu :

$$Kn = \frac{2 \lambda_g}{d_p} \quad [1.3]$$

Selon la valeur de Kn , la continuité du milieu peut être caractérisée par les trois régimes suivants :

– $Kn \ll 1$ (c'est-à-dire $\lambda_g \ll d_p/2$) : domaine continu. Le système gaz-particule constitue un milieu continu ;

– $0,4 < Kn < 20$ (c'est-à-dire $\lambda_g \approx d_p/2$) : domaine de transition. L'apparition de discontinuités interfaciales est à l'origine d'une diminution des forces de frottement agissant sur la particule. Cette réduction du frottement est souvent imagée en considérant que les molécules du gaz « glissent » à la surface de la particule au lieu d'entrer en collision. D'où le terme générique utilisé de régime d'écoulement glissant (*slip flow regime* en anglais). A noter que les valeurs limites de Kn doivent être considérées comme des ordres de grandeur car, selon les auteurs, elles peuvent être légèrement différentes. A température et pression ambiantes, la plupart des auteurs s'accordent sur un domaine de transition pour des tailles de particule comprises entre $0,1 \mu m$ et $1 \mu m$ environ ;

– $Kn \gg 1$ (c'est-à-dire $\lambda_g \gg d_p/2$) : domaine moléculaire. Les collisions entre les molécules du gaz porteur se font plus rares que les collisions gaz-particule et le milieu ne peut plus être considéré comme continu. Dans ce domaine, le déplacement aléatoire des particules est régi par la théorie cinétique des gaz.

1.2. Paramètres inertiels

Une particule de faible dimension en suspension dans un gaz porteur est soumise au mouvement brownien. L'action d'un champ de forces extérieures va se traduire, sur la particule, par la superposition au mouvement désordonné d'un mouvement de dérive continu. C'est cette dernière que nous nous proposons d'étudier. Nous admettrons que les seules forces susceptibles d'agir sur la particule sont, d'une part, la résistance offerte par le milieu au déplacement de cette dernière et, d'autre part, les forces extérieures. Les interactions entre les particules seront négligées.

1.2.1. Force de traînée

La force de traînée (F_t) se rapporte à la force qui s'oppose au mouvement relatif d'une particule dans l'air ou plus généralement dans un gaz. Elle est dirigée dans le

sens opposé au mouvement et dépend de la vitesse de la particule par rapport au gaz qui l'entoure. Elle a pour expression :

$$F_t = C_t A_p \frac{\rho_g U^2}{2} \quad [1.4]$$

avec A_p , la surface projetée de la particule (m^2); U , la vitesse de déplacement de la particule ($m.s^{-1}$); C_t , le coefficient de traînée (-) et ρ_g , la masse volumique du gaz ($kg.m^{-3}$).

Le coefficient de traînée est fonction du régime d'écoulement autour de la particule défini par le nombre de Reynolds de particule (Re_p) :

$$Re_p = \frac{\rho_g U d_p}{\mu} \quad [1.5]$$

Le tableau 1.1 présente quelques expressions du coefficient de traînée (C_t), pour des particules sphériques en fonction du régime d'écoulement.

Re_p	Coefficient de traînée C_t	Référence
$Re_p < 0,1$	$\frac{24}{Re_p}$	(Baron and Willeke 2001)
$0,1 \leq Re_p < 5$	$\frac{24}{Re_p} (1 + 0,0196 Re_p)$	(Baron and Willeke 2001)
$5 \leq Re_p < 1000$	$\frac{24}{Re_p} (1 + 0,158 Re_p^{2/3})$	(Baron and Willeke 2001)
$1000 \leq Re_p < 2 \cdot 10^5$	0,44	(Baron and Willeke 2001)
$Re_p < 2,6 \cdot 10^5$	$\frac{24}{Re_p} (1 + 0,1806 Re_p^{0,6459}) + \frac{0,4251}{1 + 6881 Re_p^{-1}}$	(Haider and Levenspiel 1989)

Tableau 1.1. Différentes expressions du coefficient de traînée

L'ensemble des corrélations du tableau 1.1 sont représentées sur la figure 1.3. A noter que la corrélation établie par (Haider and Levenspiel 1989) sur 408 points expérimentaux permet de balayer un large domaine de nombres de Reynolds.

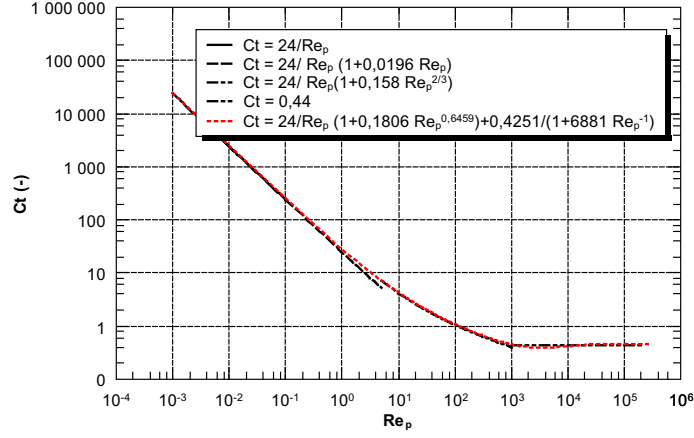


Figure 1.3. Coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds pour des particules sphériques

1.2.1.1. Domaine continu

Si $Kn \ll 1$, la taille des particules est grande devant le libre parcours moyen du gaz porteur, le fluide peut donc être considéré comme un milieu continu. En régime laminaire, en remplaçant Ct par $24/Re_p$, la force de traînée se réduit à la loi de Stokes :

$$Ft = 3 \pi \mu d_p U \quad [1.6]$$

Dans le cas de particules non sphériques, on introduit le facteur de forme dynamique χ . Il est défini comme le rapport de la force de traînée de la particule sur la force de traînée de la sphère de même volume que la particule (d_V) (voir section 1.4). Soit :

$$\chi = \frac{Ft}{Ft(d_V)} \quad [1.7]$$

d'où :

$$Ft = 3 \pi \mu \chi d_V U \quad [1.8]$$

Des valeurs du facteur de forme dynamique χ pour différentes formes de particule (Hinds 1999 ; Baron and Willeke 2001) sont listées dans le tableau 1.2 :

Particules	Facteur de forme dynamique χ
Sphère	1
Cube	1,08
Particule de sable	1,57
Particule d'alumine anguleuse	1,2 à 1,4
Particule d' UO_2	1,28
Agglomérat compact de 3 particules sphériques	1,15
Agglomérat compact de 4 particules sphériques	1,17
Chaînette de 2 particules sphériques	1,12
Chaînette de 3 particules sphériques	1,27
Chaînette de 4 particules sphériques	1,32

Tableau 1.2. Facteur de forme dynamique χ pour différentes formes de particule

1.2.1.2. Domaine intermédiaire

Si $Kn \approx 1$, les dimensions des vides intermoléculaires et des particules étant comparables, le milieu ne peut plus être considéré comme continu. Dans ce cas, la vitesse relative des molécules du gaz porteur à la surface des particules n'est pas nulle. De ce fait, la force de traînée est plus faible. Pour corriger cet effet, un coefficient correcteur (Cu), connu sous le nom de coefficient de Cunningham, facteur de glissement ou facteur de Millikan est introduit. Ainsi la loi de Stokes devient :

$$Ft = \frac{3 \pi \mu d_p U}{Cu} \quad [1.9]$$

Ce facteur de correction a pour expression :

$$Cu = 1 + A Kn + B Kn \exp\left(\frac{-C}{Kn}\right) \quad [1.10]$$

où A, B, C sont des constantes déterminées expérimentalement. Le tableau 1.3 rassemble les valeurs de ces constantes recensées dans la littérature.

La figure 1.4 montre que le facteur de correction augmente lorsque la taille des particules diminue, c'est-à-dire lorsque le nombre de Knudsen augmente. Le facteur de Cunningham tend vers 1 lorsque l'on s'approche du régime continu ($Kn \ll 1$ soit $d_p \gg \lambda_g$). Quel que soit le jeu de constantes utilisé, les valeurs du coefficient de Cunningham restent proches. (Bau 2008) souligne que le rapport entre les coefficients calculés selon les différents auteurs rapportés à celui déterminé par (Kim *et al.* 2005) est égal à $1 \pm 0,03$.

D'autres expressions du coefficient de correction existent. Citons :

Référence	A	B	C	Taille (μm)	Aérosol
(Millikan 1923)	1,250	0,420	0,870	0,35-2,5	Goutte d'huile
(Allen and Raabe 1982)	1,155	0,471	0,596	0,35-2,5	Goutte d'huile
(Buckley and Loyalka 1989)	1,099	0,518	0,425	0,35-2,5	Goutte d'huile
(Rader 1990)	1,207	0,440	0,780		Goutte d'huile
(Allen and Raabe 1985)	1,142	0,558	0,999	0,8-5,0	Polystyrene Latex
(Hutchins <i>et al.</i> 1995)	1,231	0,470	1,178	1,0-2,2	Polystyrene Latex
(Kim <i>et al.</i> 2005)	1,165	0,483	0,997	0,02-0,27	Polystyrene Latex
(Jung <i>et al.</i> 2012)	1,165	0,480	1,001	0,02-0,10	Polystyrene Latex

Tableau 1.3. Valeurs expérimentales des constantes de la relation [1.10]

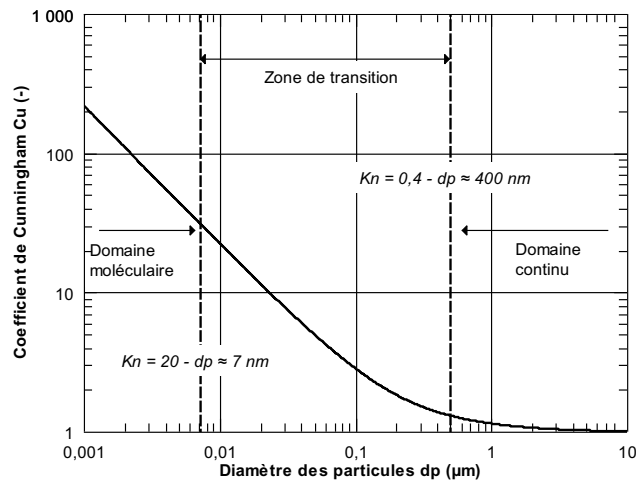


Figure 1.4. Evolution du facteur de correction de Cunningham C_u en fonction du diamètre des particules d_p dans l'air $\lambda_{air} = 66,5 \text{ nm}$ à partir des coefficients de (Kim *et al.* 2005)

– la relation de Davies, fonction de la pression du gaz et du diamètre des particules, qui a pour expression :

$$C_u = 1 + \frac{1}{P d_p} [15,60 + 7,00 \exp(-0,059 P d_p)] \quad [1.11]$$

avec :

- T : 293 K ;
- P : pression du gaz en kPa ;
- d_p : diamètre de la particule en μm ;
- la relation d'Einstein-Cunningham :

$$Cu = 1 + 1,7 Kn \quad [1.12]$$

1.2.2. Dérive dans un champ de forces

Dans un air immobile, lorsqu'une particule de masse (m_p) est soumise à un champ de forces constant, elle atteint une vitesse de dérive qui peut être déduite de l'équation d'équilibre des forces [1.13].

Soit :

$$m_p \frac{dU}{dt} = \mathcal{F} - Ft \quad [1.13]$$

En régime de Stokes :

$$Ft = \frac{3 \pi \mu d_p}{Cu} U \quad [1.14]$$

d'où :

$$\frac{Cu m_p}{3 \pi \mu d_p} \frac{dU}{dt} + U = \frac{\mathcal{F} Cu}{3 \pi \mu d_p} \quad [1.15]$$

En supposant une vitesse nulle, au temps $t = 0$, la solution de l'équation [1.15] devient :

$$U = \frac{Cu \mathcal{F}}{3 \pi \mu d_p} \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad [1.16]$$

avec τ le temps de relaxation de la particule défini par :

$$\tau = \frac{Cu m_p}{3 \pi \mu d_p} \quad [1.17]$$

Dans de nombreux ouvrages consacrés à la physique des aérosols (Renoux and Boulaud 1998 ; Hinds 1999 ; Baron and Willeke 2001), il est commun de corréler le temps de relaxation à la mobilité dynamique B :

$$\tau = m_p B \quad [1.18]$$

soit :

$$B = \frac{Cu}{3 \pi \mu d_p} \quad [1.19]$$

Pour une particule sphérique :

$$\tau = \frac{\rho_p d_p^2 Cu}{18 \mu} \quad [1.20]$$

La vitesse limite de dérive pour $t \gg \tau$ s'exprime alors par :

$$\lim_{t \rightarrow +\infty} U = \frac{Cu \mathcal{F}}{3 \pi \mu d_p} \quad [1.21]$$

1.2.2.1. *Champ de pesanteur*

Si le champ de force est celui de la pesanteur, la force exercée sur une particule est le poids (Fp) si on néglige la poussée d'Archimède :

$$\mathcal{F} = Fp = \rho_p V_p g \quad [1.22]$$

Pour une particule sphérique, l'équation [1.22] devient :

$$Fp = \frac{\pi \rho_p d_p^3}{6} g \quad [1.23]$$

En remplaçant, dans l'équation [1.21], la force \mathcal{F} par son expression [1.23], la vitesse limite obtenue correspond à la vitesse terminale de chute de la particule en régime de Stokes. Soit :

$$U_{ts} = \frac{\rho_p d_p^2 Cu g}{18 \mu} \quad [1.24]$$

1.2.2.2. *Champ électrique*

Lorsqu'une particule portant une charge électrique q ($q = n e$ avec n , le nombre de charges élémentaires et e , la charge élémentaire) est placée dans un champ électrique E_{ce} , elle subit une force Fe égale à :

$$Fe = n e E_{ce} \quad [1.25]$$

Dans ces conditions, la vitesse limite de dérive est donnée par l'expression suivante :

$$U_e = \frac{n e E_{ce} C u}{3 \pi \mu d_p} \quad [1.26]$$

On introduit un coefficient de proportionnalité entre la vitesse de dérive et l'intensité du champ électrique appelé mobilité électrique Z_{me} :

$$Z_{me} = \frac{U_e}{E_{ce}} \quad [1.27]$$

soit :

$$Z_{me} = \frac{n e C u}{3 \pi \mu d_p} \quad [1.28]$$

La mobilité électrique Z_{me} peut être reliée à la mobilité dynamique [1.19] par :

$$Z_{me} = n e B \quad [1.29]$$

La plupart des particules constitutives des aérosols portent des charges électriques liées à la mise en suspension de ces dernières ou à l'adsorption d'ions à leur surface (Renoux and Boulaud 1998) (voir aussi section ??). En dehors de toutes mesures expérimentales avec des dispositifs plus ou moins complexes (Brown 1997 ; Ouf and Sillon 2009 ; Simon *et al.* 2015)... il est difficile d'estimer leur distribution de charge. Dans certaines conditions, sous l'effet des collisions des particules avec les ions présents dans l'air, les particules préalablement chargées vont progressivement perdre leur charge à mesure que les ions s'y fixent et les particules, initialement neutres, vont acquérir une certaine charge. Au final, ces deux processus conduisent à un état d'équilibre. En présence d'ions bipolaires, cet état d'équilibre est appelé équilibre de Boltzmann (Renoux and Boulaud 1998 ; Hinds 1999). Ainsi, pour des concentrations égales en ions positifs et négatifs, la fraction des particules portant n charges élémentaires (positives ou négatives) est donnée par :

$$f_n = \frac{\exp\left(\frac{-n^2 e^2}{4\pi \varepsilon_0 d_p k_B T}\right)}{\sum_{i=-\infty}^{\infty} \exp\left(\frac{-i^2 e^2}{4\pi \varepsilon_0 d_p k_B T}\right)} \quad [1.30]$$

avec ε_0 , la permittivité du vide ($\varepsilon_0 = 8,84 \cdot 10^{-12} F.m^{-1}$).

(Hinds 1999), pour des particules de diamètre supérieur à $0,05 \mu m$, l'équation [1.30] peut s'écrire :

$$f_n = \left(\frac{e^2}{4\pi^2 \varepsilon_0 d_p k_B T} \right)^{1/2} \exp \left(\frac{-n^2 e^2}{4\pi \varepsilon_0 d_p k_B T} \right) \quad [1.31]$$

Ainsi, à l'équilibre de Boltzmann, si l'aérosol est globalement neutre, les particules d'une taille donnée sont autant chargées positivement que négativement. Par ailleurs, plus la taille de la particule diminue, plus la fraction de particules neutres augmente comme l'illustre la figure 1.5.

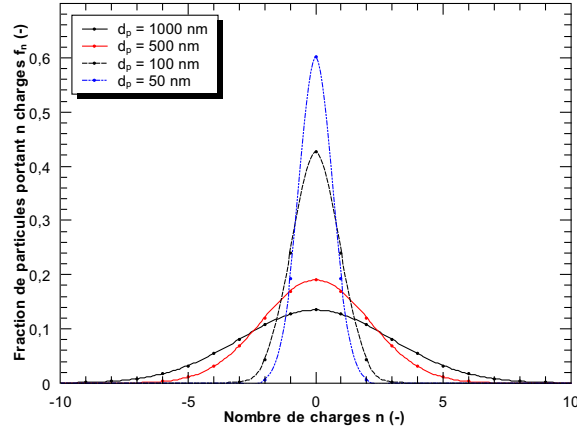


Figure 1.5. Evolution de la fraction de particules portant n charges pour 4 tailles de particules d_p à l'équilibre de Boltzmann [1.30]

Cependant, pour des particules de diamètre inférieur à $50 nm$, la loi d'équilibre de Boltzmann sous-estime la fraction de particules électriquement chargées. Pour tenir compte de cette différence, (Fuchs 1963), Hoppel et (Hoppel and Frick 1986) puis (Wiedensohler 1988) ont développé différents modèles. (Wiedensohler 1988) propose donc la formulation empirique suivante, validée expérimentalement pour des particules de diamètre supérieur à $2,4 nm$:

$$f_n = 10 \left[\sum_{i=0}^5 a_i(n) (\log_{10} d_p (nm))^i \right] \quad [1.32]$$

où $a_i(n)$ sont les coefficients de régression fournis dans le tableau 1.4. Cette relation est valable pour $1 \leq d_p \leq 1000 nm$ pour $n \in [-1; 1]$ et pour $20 \leq d_p \leq 1000 nm$ pour $n \in [-2; 2]$.

n	$a_0(n)$	$a_1(n)$	$a_2(n)$	$a_3(n)$	$a_4(n)$	$a_5(n)$
-2	-26,3328	35,9044	-21,4608	7,0867	-1,3088	0,1051
-1	-2,3197	0,6175	0,6201	-0,1105	-0,126	0,0297
0	-0,0003	-0,1014	0,3073	-0,3372	0,1023	-0,0105
1	-2,3484	0,6044	0,48	0,0013	-0,1544	0,032
2	-44,4756	79,3772	-62,89	26,4492	-5,748	0,5059

Tableau 1.4. Coefficients $a_i(n)$ de la relation [1.32] de (Wiedensohler 1988)

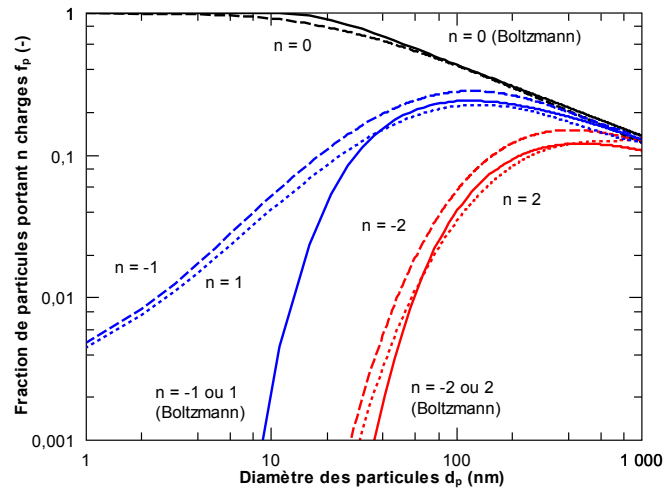


Figure 1.6. Evolution de la fraction de particules portant n charges aux équilibres de Boltzmann ([1.30] - trait continu) et Wiedensohler ([1.32] - traits pointillés)

A noter que dans l'ouvrage de (Baron and Willeke 2001), les coefficients $a_4(1)$ et $a_5(2)$, pourtant attribués à Wiedensohler, sont respectivement égaux à -0,1553 et 0,5049 sans que les auteurs n'expliquent ces différences.

La figure 1.6 présente l'évolution de la fraction de particules portant n charges en fonction du diamètre des particules. Pour des particules de diamètre inférieur à 100 nm, l'équilibre de Boltzmann ne décrit pas de façon satisfaisante la charge réelle des particules approximée par la relation de Wiedensohler [1.32]. On peut également noter la dissymétrie de l'équilibre décrit par (Wiedensohler 1988) entre les charges positives et négatives liée à la différence de mobilité électrique des ions positifs et négatifs. Une

étude menée sur la distribution de charges bipolaires dans d'autres gaz porteurs (argon et azote) montre une asymétrie plus importante que dans l'air qui est principalement imputable, selon les auteurs (Wiedensohler and Fissan 1991), aux incertitudes sur la détermination des masses et des mobilités électriques des ions.

1.3. Paramètre diffusionnel

De par leur faible taille et leur faible inertie, les aérosols sont sensibles aux actions qui seraient sans effet sur des objets de dimension plus importante. Ainsi, les particules en suspension dans un gaz à température et pression constantes soumises aux chocs des molécules de gaz se déplacent sous l'action du mouvement brownien pour tendre vers une concentration uniforme dans tout le volume gazeux. Selon l'équation d'Einstein, le coefficient de diffusion de la particule \mathcal{D} est :

$$\mathcal{D} = k_B T B \quad [1.33]$$

avec : k_B la constante de Boltzmann égale à $1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$.

Pour une particule sphérique, le coefficient de diffusion s'écrit :

$$\mathcal{D} = \frac{k_B T C u}{3 \pi \mu d_p} \quad [1.34]$$

La distance moyenne \bar{z} parcourue par la particule durant un temps t est donnée par la première relation d'Einstein :

$$\bar{z} = \sqrt{2 \mathcal{D} t} \quad [1.35]$$

La figure 1.7 décrit l'évolution du coefficient de diffusion [1.34] en fonction de la taille des particules. A titre de comparaison, le coefficient de diffusion des molécules d'« air » à température ambiante est de $2 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$.

1.4. Diamètre équivalent

Définir une particule par une seule grandeur est relativement aisé si la particule en question est sphérique. Dans la réalité, ce cas est rarement rencontré (par exemple les fibres d'amiante, les agglomérats ou agrégats de particules...). Aussi est-il nécessaire de faire appel à la notion de sphère équivalente ; c'est-à-dire le diamètre de la sphère qui aurait une même propriété que la particule (par exemple la même masse, la même vitesse de sédimentation, la même surface spécifique...).

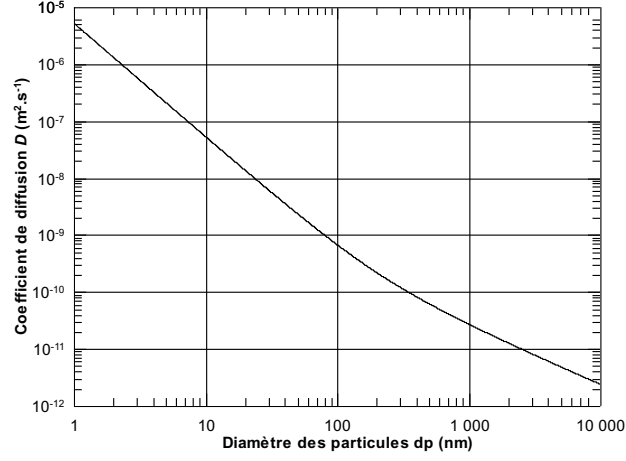


Figure 1.7. Evolution du coefficient de diffusion \mathcal{D} en fonction du diamètre des particules en suspension dans l'air à pression et température ambiantes

1.4.1. Diamètre équivalent en masse, d_M

Le diamètre équivalent en masse d'une particule (d_M) est défini comme le diamètre de la sphère de même masse volumique et de même masse que la particule :

$$d_M = \sqrt[3]{\frac{6 m_p}{\pi \rho_m}} \quad [1.36]$$

1.4.2. Diamètre équivalent en volume, d_V

Le diamètre équivalent en volume (d_V) est le diamètre de la sphère de même volume que la particule considérée :

$$d_V = \sqrt[3]{\frac{6 m_p}{\pi \rho_p}} \quad [1.37]$$

A noter que pour des particules non poreuses et constituées d'un seul matériau, le diamètre équivalent en volume est égal au diamètre équivalent en masse. Dans le cas contraire, pour des particules de porosité ε , on peut montrer que :

$$d_V = \sqrt[3]{\frac{\rho_m}{\rho_p}} d_M = \sqrt[3]{\frac{1}{1 - \varepsilon}} d_M \quad [1.38]$$

de sorte que $d_V \geq d_M$.

1.4.3. Diamètre de mobilité électrique, d_{me}

Par définition, le diamètre de mobilité électrique d_{me} est le diamètre de la sphère portant une charge électrique élémentaire et de même mobilité électrique Z_{me} que la particule considérée. Soit :

$$d_{me} = \frac{e Cu(d_{me})}{3 \pi \mu Z_{me}} \quad [1.39]$$

1.4.4. Diamètre de Stokes, d_{St}

Le diamètre de Stokes est le diamètre qu'aurait une particule sphérique possédant la même vitesse de chute en régime de Stokes et la même masse volumique que la particule considérée. Soit :

$$d_{St} = \sqrt{\frac{18 \mu U_{ts}}{\rho_p Cu(d_{St}) g}} \quad [1.40]$$

1.4.5. Diamètre aérodynamique, d_{ae}

Le diamètre aérodynamique d'une particule d_{ae} est défini comme le diamètre d'une particule sphérique de masse volumique $\rho_o = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$ et de même vitesse de chute que la particule considérée :

$$d_{ae} = \sqrt{\frac{18 \mu U_{ts}}{\rho_o Cu(d_{ae}) g}} \quad [1.41]$$

1.4.6. Relation entre ces différents diamètres

Ces différents diamètres équivalents sont tous fondés sur différentes propriétés de la particule. Il est néanmoins possible de les relier entre eux. Considérons une particule non sphérique, non poreuse et de masse volumique ρ_p égale à la masse volumique du matériau ρ_m .

1.4.6.1. Relation entre le diamètre aérodynamique d_{ae} et le diamètre équivalent en volume d_V

La vitesse terminale de chute de la particule U_{ts} , peut être calculée soit à partir du diamètre aérodynamique de la particule [1.41] :

$$U_{ts}(d_{ae}) = \frac{\rho_o Cu(d_{ae}) d_{ae}^2 g}{18 \mu} \quad [1.42]$$

soit, à partir du diamètre équivalent en volume d_V :

$$U_{ts}(d_V) = \frac{\rho_p Cu(d_V) d_V^2 g}{18 \chi \mu} \quad [1.43]$$

En égalant les expressions [1.42] et [1.43], il vient :

$$d_{ae} = \sqrt{\frac{\rho_p Cu(d_V)}{\chi \rho_o Cu(d_{ae})}} d_V \quad [1.44]$$

1.4.6.2. Relation entre le diamètre de Stokes d_{St} et le diamètre équivalent en volume d_V

La vitesse terminale de chute calculée à partir du diamètre de Stokes est donnée par :

$$U_{ts}(d_{St}) = \frac{\rho_p Cu(d_{St}) d_{St}^2 g}{18 \mu} \quad [1.45]$$

soit en égalant les équations [1.43] et [1.45] :

$$d_{St} = \sqrt{\frac{Cu(d_V)}{\chi Cu(d_{St})}} d_V \quad [1.46]$$

1.4.6.3. Relation entre le diamètre de mobilité électrique d_{me} et le diamètre équivalent en volume d_V

En appliquant la même démarche que précédemment sur les mobilités électriques calculées à partir des deux diamètres :

$$Z_{me}(d_{me}) = Z_{me}(d_V) \quad [1.47]$$

soit :

$$\frac{Cu(d_{me})}{d_{me}} = \frac{Cu(d_V)}{\chi d_V} \quad [1.48]$$

on peut montrer que :

$$d_{me} = \frac{\chi Cu(d_{me})}{Cu(d_V)} d_V \quad [1.49]$$

La tableau ?? présente les différentes expressions du facteur de correction pour passer du diamètre d_j à d_i . Pour des particules de diamètre supérieur au micromètre, les facteurs de correction se simplifient (tableau 1.5) car les valeurs du coefficient de Cunningham tendent vers 1.

La figure 1.8 illustre l'évolution du facteur de conversion (d_i/d_v) pour $d_i = d_{ae}$, d_{me} , d_{St} calculé avec les relations du tableau ?? en fonction du diamètre équivalent en volume (d_V) pour des particules non poreuses de masse volumique $\rho_p = 2000 \text{ kg.m}^{-3}$ et de facteur de forme dynamique $\chi = 1, 2$.

Cette représentation met clairement en évidence que les diamètres équivalents représentés ont des valeurs très différentes et relativement éloignées du diamètre équivalent en volume puisque les facteurs de conversion sont très différents de 1, soulignant de fait l'importance de préciser le type de diamètre équivalent lors de la caractérisation en taille d'un aérosol. Cette figure révèle également l'écart lié à l'utilisation des relations simplifiées listées dans le tableau 1.5 et tracées en ligne continue. Ainsi, pour une particule de diamètre équivalent en volume $d_V = 10 \text{ nm}$ le facteur de correction passe de 1,64 à 1,29 en négligeant le facteur de Cunningham ; soit une sous-estimation de 21 % du diamètre aérodynamique réel.

Les différences entre les divers diamètres équivalents peuvent être illustrées visuellement. Ainsi, la figure 1.9 présente quelques diamètres de sphère équivalente calculés pour les trois types de particules suivantes :

- particule 1 : particule sphérique poreuse monochargée de diamètre $50 \text{ }\mu\text{m}$, de masse volumique $\rho_m = 2000 \text{ kg.m}^{-3}$ et de porosité $\epsilon = 0,4$;
- particule 2 : particule sphérique non poreuse monochargée de diamètre $50 \text{ }\mu\text{m}$ et de masse volumique $\rho_m = 2000 \text{ kg.m}^{-3}$;
- particule 3 : particule cubique non poreuse monochargée, d'arête $50 \text{ }\mu\text{m}$, de masse volumique $\rho_m = 2000 \text{ kg.m}^{-3}$ et de facteur de forme dynamique $\chi = 1,08$.

$d_i \backslash d_j$	d_{ae}	d_v	d_{me}	d_{st}
d_{ae}	1	$\sqrt{\frac{\chi \rho_o}{\rho_p}}$	$\sqrt{\frac{\rho_o}{\rho_p}} \chi^{3/2}$	$\sqrt{\frac{\rho_o}{\rho_p}}$
d_v	$\sqrt{\frac{\rho_p}{\chi \rho_o}}$	1	χ	$\sqrt{\frac{1}{\chi}}$
d_{me}	$\sqrt{\frac{\rho_p}{\rho_o}} \left(\frac{1}{\chi}\right)^{3/2}$	$\frac{1}{\chi}$	1	$\left(\frac{1}{\chi}\right)^{3/2}$
d_{st}	$\sqrt{\frac{\rho_p}{\rho_o}}$	$\sqrt{\chi}$	$\chi^{3/2}$	1

Tableau 1.5. Facteurs de conversion $\left(\frac{d_i}{d_j}\right)$ entre les différents diamètres (particule non sphérique, non poreuse et de taille supérieure à $1 \mu m$)

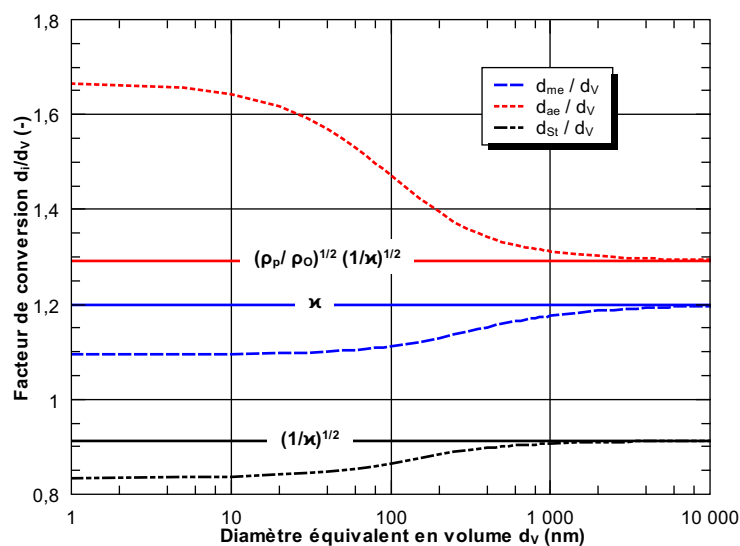


Figure 1.8. Evolution du facteur de conversion (d_i/d_v) pour $d_i = d_{ae}, d_{me} - d_{st}$ en fonction du diamètre équivalent en volume (d_v) – Particules non poreuses de masse volumique $\rho_p = 2000 \text{ kg.m}^{-3}$ et de facteur de forme dynamique $\chi = 1,2$

1.5. Particules nanostructurées

Les particules nanostructurées sont des agglomérats ou des agrégats de nanoparticules. La norme (ISO/TS 27687 2008) définit ces deux termes comme suit :



















Particule	d_v	d_{St}	d_M	d_{ae}	d_{me}
 Particule 1	 50 μm	 38,7 μm	 42,2 μm	 54,8 μm	 50 μm
 Particule 2	 50 μm	 50 μm	 50 μm	 70,7 μm	 50 μm
 Particule 3	 62,0 μm	 59,7 μm	 62,0 μm	 84,4 μm	 54 μm

Figure 1.9. Différents diamètres de sphère équivalente calculés pour les trois types de particules monochargées. En bleu foncé : diamètre équivalent = dimension géométrique de la particule ; en bleu clair : diamètre équivalent < dimension géométrique de la particule ; en rouge : diamètre équivalent > dimension géométrique de la particule.

– agrégat : ensemble de particules fortement liées ou fusionnées entre elles dont la surface externe peut être significativement plus petite que la somme des surfaces de chacun de ses composants ;

– agglomérat : ensemble de particules, d'agrégats ou mélange des deux faiblement liés dont la surface externe résultante est similaire à la somme des surfaces de chacun de ses composants.

Il est important de signaler que les définitions des termes agglomérat et agrégat varient selon les normes. Ainsi, comme l'ont mis en (Nichols *et al.* 2002), les normes britanniques (British Standards) et internationales (ISO) donnent des définitions totalement opposées. En effet, la définition de l'agglomérat de la norme britannique correspond à celle de l'agrégat de la norme ISO et réciproquement. Dans la suite de l'ouvrage, les termes agrégat et agglomérat seront utilisés selon les définitions de la norme ISO.

1.5.1. Particules quasi-fractales

1.5.1.1. Dimension fractale

La morphologie de ce type d'amas est complexe et reste souvent assimilée à une morphologie fractale même si en réalité elle ne l'est pas à toutes les échelles. On parle alors de morphologie quasi-fractale. Pour caractériser un agrégat ou agglomérat, on

utilise parfois le diamètre de giration (d_G). Si toute la masse de l'amas était concentrée au diamètre de giration, alors le moment d'inertie serait le même que pour l'amas initial. La dimension fractale des agrégats ou agglomérats (D_{frac}), dont la valeur peut varier de 1 à 3, permet de caractériser la forme et d'estimer la compacité de ces amas. Ainsi, plus la dimension fractale sera élevée, plus l'amas sera dense. Pour une dimension fractale de 2, l'agrégat se présente sous la forme d'une surface aérée et prend la forme d'un volume compact lorsque D_{frac} tend vers 3. La dimension fractale permet de lier le nombre de particules primaires (N_{pp}) composant l'agglomérat à la taille des éléments primaires (d_{pp}) [1.50] avec k_f , le préfacteur fractal :

$$N_{pp} = k_f \left(\frac{d_G}{d_{pp}} \right)^{D_{frac}} \quad [1.50]$$

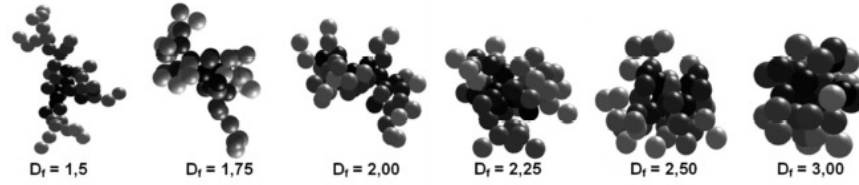


Figure 1.10. Illustration de la morphologie d'agglomérats de différentes dimensions fractales (Ouf 2006)

Initialement, seule l'analyse de clichés d'agglomérats permettait de déterminer la dimension fractale (Foroutan-Pour *et al.* 1999 ; Lee and Hsieh 2010 ; Kanniah *et al.* 2012)... Afin de s'affranchir de cette méthode fastidieuse et chronophage, certains auteurs ont développé une méthodologie fondée sur la diffusion de lumière (Wang and Sorensen 1999 ; Nichols *et al.* 2002 ; Kim and Choi 2003)... D'autres ont tenté de relier la masse au diamètre en mobilité électrique de l'agglomérat *via* une dimension fractale :

$$m_{agg} = k_{f_{me}} \left(\frac{d_{me}}{d_{pp}} \right)^{D_{frac_{me}}} \quad [1.51]$$

ou encore :

$$N_{pp} = k_{me} \left(\frac{d_{me}}{d_{pp}} \right)^{D_{frac_{me}}} \quad [1.52]$$

avec $k_{f_{me}}$ et k_{me} les préfacteurs liés par la relation suivante (Shapiro *et al.* 2012) :

$$k_{me} = \frac{6 k_{f_{me}}}{\pi \rho_p d_{pp}^3} \quad [1.53]$$

1.5.1.2. Masse volumique effective

Dans le cas des particules nanostructurées, la masse volumique d'un agglomérat/agrégat est non seulement liée à la composition chimique du matériau mais également à sa structure/morphologie, c'est-à-dire à la porosité présente entre les particules constitutives de l'agglomérat/agrégat. En conséquence, on définit la notion de masse volumique effective, ρ_e , comme le rapport de la masse de l'agglomérat/agrégat et de son volume équivalent en mobilité électrique :

$$\rho_e = \frac{6 m_{agg}}{\pi d_{me}^3} \quad [1.54]$$

A noter que pour une particule sphérique et non poreuse, cette masse volumique effective correspond à la masse volumique du matériau. Cette propriété s'avère indispensable pour le passage d'un diamètre équivalent à un autre dans le cas de particules nanostructurées. En effet, les ratios de conversion définis précédemment (tableau ??) doivent être modifiés en considérant que :

$$\rho_p = \rho_e \left(\chi \frac{Cu(d_{me})}{Cu(d_V)} \right)^3 \quad [1.55]$$

Ainsi, par exemple, la relation liant le diamètre aérodynamique au diamètre équivalent en mobilité électrique est :

– pour une particule non sphérique et non poreuse :

$$d_{me} = d_{ae} Cu(d_{me}) \sqrt{\frac{\rho_o}{\rho_p} Cu(d_{ae})} \left(\frac{\chi}{Cu(d_V)} \right)^{3/2} \quad [1.56]$$

– pour une particule nanostructurée :

$$d_{me} = d_{ae} \sqrt{\frac{\rho_o Cu(d_{ae})}{\rho_e Cu(d_{me})}} \quad [1.57]$$

Différentes techniques ont été récemment développées afin de remonter à la masse volumique effective des particules nanostructurées par mesure simultanée de deux diamètres équivalents différents. Généralement, les méthodes emploient, en série ou en parallèle, un analyseur de mobilité électrique (DMA¹) qui sélectionne les particules selon leur diamètre de mobilité électrique et un impacteur en cascade (ELPI²) qui

1. DMA : *Differential Mobility Analyzer*.

2. ELPI : *Electrical Low Pressure Impactor*.

mesure l'intensité de la charge portée par les particules selon leur diamètre aérodynamique, mesure qui permet de déduire la concentration des particules selon leur diamètre aérodynamique. L'association de ces deux appareils en parallèle permet de déterminer la distribution granulométrique des particules selon leur diamètre équivalent en mobilité électrique et selon leur diamètre aérodynamique. La masse volumique effective est ensuite déterminée en utilisant une procédure d'ajustement pour les deux distributions de taille (Price *et al.* 2014). L'association en série (Lehmann *et al.* 2004) consiste à sélectionner les particules d'une taille donnée en fonction de leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA, puis selon leur diamètre aérodynamique par un impacteur en cascade à basse pression (ELPI) afin d'en déduire, par le calcul, la masse volumique effective (Schmid *et al.* 2007 ; Skillas *et al.* 1999 ; Van Gulijk *et al.* 2004 ; Virtanen *et al.* 2004 ; Bau *et al.* 2014). Cependant, ces couplages, série ou parallèle, présentent certaines limitations. En effet, la faible résolution de l'ELPI et la possibilité que des particules de même diamètre se déposent sur plusieurs étages de l'impacteur (Dong *et al.* 2004) sont à l'origine d'imprécisions qui ne peuvent être résolues que par l'utilisation d'algorithmes d'inversion complexes (Bau and Witschger 2013). De plus, les débits d'échantillonnage différents de ces deux appareils nécessitent de diluer l'aérosol ce qui peut générer un biais supplémentaire.

Une autre approche pour la détermination de la masse volumique effective d'agglomérats consiste à mesurer la masse de particules de diamètre connu (Mc Murry *et al.* 2002). Bien que plus chronophage que la précédente, cette méthode est plus facile à mettre en œuvre et ne nécessite pas d'hypothèse particulière. Elle consiste en la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA puis en la mesure de leur masse *via* un analyseur de masse (APM³) développé par (Ehara *et al.* 1996). Pour les particules non poreuses, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules sans passer par une étape d'échantillonnage avant analyse au pycnomètre. Pour les particules nanostructurées, bien que la masse volumique effective ne puisse être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée récemment pour déterminer la masse volumique effective de particules diesel (Shapiro *et al.* 2012 ; Khalizov *et al.* 2012 ; Ghazi *et al.* 2013 ; Rissler *et al.* 2013), de nanotubes de carbone (Kim *et al.* 2009) ou encore de diverses particules métalliques (Charvet *et al.* 2014).

1.6. Bibliographie

Allen, M.D., Raabe, O.G. (1985). Slip correction measurements of spherical solid aerosol particles in an improved millikan apparatus. *Aerosol Science and Technology*, 4(3), 269–286.

3. APM : *Aerosol Particle Mass analyzer*.

- Allen, M., Raabe, O. (1982). Re-evaluation of millikan's oil drop data for the motion of small particles in air. *Journal of Aerosol Science*, 13(6), 537 – 547. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850282900192>
- Baron, P., Willeke, K. (2001). *Aerosol measurement : principles, techniques, and applications*. A Wiley-Interscience publication, Wiley. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <https://books.google.fr/books?id=nBpSAAAAMAAJ>
- Bau, S. (2008). Etude des moyens de mesure de la surface des aérosols ultrafins pour l'évaluation de l'exposition professionnelle. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy.
- Bau, S., Bémer, D., Gripari, F., Appert-Collin, J.-C., Thomas, D. (2014). Determining the effective density of airborne nanoparticles using multiple charging correction in a tandem dma/elpi setup. *Journal of Nanoparticle Research*, 16(10), 1–13.
- Bau, S., Witschger, O. (2013). A modular tool for analyzing cascade impactors data to improve exposure assessment to airborne nanomaterials. *Journal of Physics : Conference Series*, 429(1). [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84876864801&partnerID=40&md5=c80473e2514b500bd51b3e820413617c>
- Brown, R. (1997). Tutorial review : simultaneous measurement of particle size and particle charge. *Journal of Aerosol Science*, 28(8), 1373–1391.
- Buckley, R., Loyalka, S. (1989). Cunningham correction factor and accommodation coefficient : Interpretation of millikan's data. *Journal of Aerosol Science*, 20(3), 347–349. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850289900098>
- Charvet, A., Bau, S., Paez Coy, N., Bémer, D., Thomas, D. (2014). Characterizing the effective density and primary particle diameter of airborne nanoparticles produced by spark discharge using mobility and mass measurements (tandem dma/apm). *Journal of Nanoparticle Research*, 16(5). [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84901326216&partnerID=40&md5=16ecc4651993465099b229e2fc188fc4>
- Dong, Y., Hays, M., Dean Smith, N., Kinsey, J. (2004). Inverting cascade impactor data for size-resolved characterization of fine particulate source emissions. *Journal of Aerosol Science*, 35(12), 1497–1512. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-9244262429&partnerID=40&md5=a6073f3d74c589628f3704c018c302e1>
- Ehara, K., Hagwood, C., Coakley, K. (1996). Novel method to classify aerosol particles according to their mass-to-charge ratio - aerosol particle mass analyser, *Journal of Aerosol Science*. 27(2), 217–234. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0030111145&partnerID=40&md5=03155e9303d4f7165bf48ce3ad19db67>

- Foroutan-Pour, K., Dutilleul, P., Smith, D. (1999). Advances in the implementation of the box-counting method of fractal dimension estimation. *Applied mathematics and computation*, 105(2), 195–210.
- Fuchs, N. (1963) On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geofisica pura e applicata*, 56(1), 185–193.
- Ghazi, R., Tjong, H., Soewono, A., Rogak, S., Olfert, J. (2013). Mass, mobility, volatility, and morphology of soot particles generated by a mckenna and inverted burner. *Aerosol Science and Technology*, 47(4), 395–405. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84872320140&partnerID=40&md5=6e212b854998a0df77e07c8993713a1d>
- Haider, A., Levenspiel, O. (1989). Drag coefficient and terminal velocity of spherical and nonspherical particles. *Powder Technology*, 58(1), 63–70. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0024656468&partnerID=40&md5=9091c196592a7715c67d847e4ac51ad8>
- Hinds, W.C. (1999). *Aerosol Technology (Second Edition)*. John Wiley & Sons.
- Hoppel, W.A., Frick, G.M. (1986). Ion—aerosol attachment coefficients and the steady-state charge distribution on aerosols in a bipolar ion environment. *Aerosol Science and Technology*, 5(1), 1–21.
- Hutchins, D., Harper, M., Felder, R. (1995). Slip correction measurements for solid spherical particles by modulated dynamic light scattering. *Aerosol Science and Technology*, 22(2), 202–218.
- ISO/TS 27687 (2008). Nanotechnologies—terminology and definitions for nano-objects—nanoparticle, nanofiber and nanoplate. Technical report, International Organization for Standardization.
- Jung, H., Mulholland, G.W., Pui, D.Y., Kim, J.H. (2012). Re-evaluation of the slip correction parameter of certified {PSL} spheres using a nanometer differential mobility analyzer (ndma). *Journal of Aerosol Science*, 51, 24 – 34. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021850212000717>
- Kanniah, V., Wu, P., Mandzy, N., Grulke, E.A. (2012). Fractal analysis as a complementary technique for characterizing nanoparticle size distributions. *Powder Technology*, 226, 189–198.
- Khalizov, A., Hogan, B., Qiu, C., Petersen, E., Zhang, R. (2012). Characterization of soot aerosol produced from combustion of propane in a shock tube. *Aerosol Science and Technology*, 46(8), 925–936. <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84862296292&partnerID=40&md5=717b19a1e26b33b6b157392087ca67e4>
- Kim, H., Choi, M. (2003). In situ line measurement of mean aggregate size and fractal dimension along the flame axis by planar laser light scattering. *Journal of aerosol science*, 34(12), 1633–1645.

- Kim, J.H., Mulholland, G.W., Kukuck, S.R., Pui, D. (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-National Institute of Standards And Technology*, 110(1), 31.
- Kim, S.b., Mulholland, G.b., Zachariah, M.b. (2009). Density measurement of size selected multiwalled carbon nanotubes by mobility-mass characterization. *Carbon*, 47(5), 1297–1302. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-61649085177&partnerID=40&md5=1638f45277af856d8153b55b7b76019a>
- Lee, W.-L., Hsieh, K.-S. (2010). A robust algorithm for the fractal dimension of images and its applications to the classification of natural images and ultrasonic liver images. *Signal Processing*, 90(6), 1894–1904.
- Lehmann, U., Niemelä, V., Mohr, M. (2004). New method for time-resolved diesel engine exhaust particle mass measurement. *Environmental Science and Technology*, 38(21), 5704–5711. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-7544251775&partnerID=40&md5=21b421b594bbe1a6aeb051aab003a8f4>
- Mc Murry, P., Wang, X., Park, K., Ehara, K. (2002). The relationship between mass and mobility for atmospheric particles : A new technique for measuring particle density. *Aerosol Science and Technology*. 36(2), 227–238. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0036168157&partnerID=40&md5=6b528edc020488e46f0874bb0ac80f1e>
- 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(3), 217.
- Nichols, G., Byard, S., Bloxham, M.J., Botterill, J., Dawson, N.J., Dennis, A., Diart, V., North, N.C., Sherwood, J.D. (2002). A review of the terms agglomerate and aggregate with a recommendation for nomenclature used in powder and particle characterization. *Journal of pharmaceutical sciences*, 91(10), 2103–2109.
- Ouf, F.-X. (2006). Caractérisation des aérosols émis lors d'un incendie. PhD thesis, Faculté des Sciences et Techniques de l'Université de Rouen.
- Ouf, F.-X., Sillon, P. (2009). Charging efficiency of the electrical low pressure impactor's corona charger : Influence of the fractal morphology of nanoparticle aggregates and uncertainty analysis of experimental results. *Aerosol Science and Technology*, 43(7), 685–698.
- Price, H., Stahlmecke, B., Arthur, R., Kaminski, H., Lindermann, J., Däuber, E., Asbach, C., Kuhlbusch, T., BéruBé, K., Jones, T. (2014). Comparison of instruments for particle number size distribution measurements in air quality monitoring. *Journal of Aerosol Science*, 76, 48–55. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84902437152&partnerID=40&md5=a2bd9ebca0bad07e810bd405450defb5>

- Rader, D.J. (1990). Momentum slip correction factor for small particles in nine common gases. *Journal of Aerosol Science*, 21(2), 161–168. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/002185029090001E>
- Renoux, A., Boulaud, D. (1998). *Les aérosols : Physiques et Métrologie*. Technique & Documentation Lavoisier.
- Rissler, J., Messing, M., Malik, A.c., Nilsson, P., Nordin, E., Bohgard, M., Sanati, M., Pagels, J. (2013). Effective density characterization of soot agglomerates from various sources and comparison to aggregation theory. *Aerosol Science and Technology*, 47(7), 792–805. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84879078735&partnerID=40&md5=9d95388e45762619d171e1db9e1f9577>
- Schmid, O., Karg, E., Hagen, D., Whitefield, P., Ferron, G. (2007). On the effective density of non-spherical particles as derived from combined measurements of aerodynamic and mobility equivalent size. *Journal of Aerosol Science*, 38(4), 431–443. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-34247147619&partnerID=40&md5=af8605dff9b1714c03345dbb14f50a78>
- Shapiro, M., Vainshtein, P., Dutcher, D., Emery, M., Stolzenburg, M., Kittelson, D., McMurry, P. (2012). Characterization of agglomerates by simultaneous measurement of mobility, vacuum aerodynamic diameter and mass. *Journal of Aerosol Science*, 44, 24–45. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-82155199496&partnerID=40&md5=d24436abbafefb017b0b63142e64a05b>
- Simon, X., Bau, S., Bémer, D., Duquenne, P. (2015). Measurement of electrical charges carried by airborne bacteria laboratory-generated using a single-pass bubbling aerosolizer. *Particuology*, 18, 179–185.
- Skills, G.B., Burtscher, H., Siegmann, K., Baltensperger, U. (1999). Density and fractal-like dimension of particles from a laminar diffusion flame. *Journal of Colloid and Interface Science*, 217(2), 269–274. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0033568384&partnerID=40&md5=4ff2c19ecf1557648dab31b331175a84>
- Van Gulijk, C., Marijnissen, J., Makkee, M., Moulijn, J., Schmidt-Ott, A. (2004). Measuring diesel soot with a scanning mobility particle sizer and an electrical low-pressure impactor : Performance assessment with a model for fractal-like agglomerates. *Journal of Aerosol Science*, 35(5), 633–655. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-4744350284&partnerID=40&md5=e3714b9d94e4be9080fbe5d5448d1699>
- Virtanen, A., Ristimäki, J., Keskinen, J.B. (2004). Method for measuring effective density and fractal dimension of aerosol agglomerates.

- Aerosol Science and Technology*, 38(5), 437–446. [En ligne]. Disponible à l'adresse : <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-3042817138&partnerID=40&md5=c5b9260190f93b6c1efbb98b9cbdba61>
- Wang, G., Sorensen, C. (1999). Diffusive mobility of fractal aggregates over the entire knudsen number range. *Physical Review E*, 60(3), 3036.
- Wiedensohler, A. (1988). An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range. *Journal of Aerosol Science*, 19(3), 387–389.
- Wiedensohler, A., Fissan, H. (1991). Bipolar charge distributions of aerosol particles in high-purity argon and nitrogen. *Aerosol Science and Technology*, 14(3), 358–364.
- Willeke, K. (1976). Temperature dependence of particle slip in a gaseous medium. *Journal of Aerosol Science*, 7(5), 381–387.

Annexe 1

Titre de l'annexe

Une autre approche pour la détermination de la masse volumique effective d'agglomérats consiste à mesurer la masse de particules de diamètre connu (Mc Murry *et al.* (Mc Murry *et al.* 2002)). Bien que plus chronophage que la précédente, cette méthode est plus facile à mettre en œuvre et ne nécessite pas d'hypothèse particulière. Elle consiste en la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA puis en la mesure de leur masse *via* un analyseur de masse (APM¹) développé par Ehara *et al.* en 1996 (Ehara *et al.* 1996). Pour les particules non poreuses, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules sans passer par une étape d'échantillonnage avant analyse au pycnomètre. Pour les particules nanostructurées, bien que la masse volumique effective ne puisse être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée récemment pour déterminer la masse volumique effective de particules diesel (Shapiro *et al.* (Shapiro *et al.* 2012); Khalizov *et al.* (Khalizov *et al.* 2012); Ghazi *et al.* (Ghazi *et al.* 2013); Rissler *et al.* (Rissler *et al.* 2013)), de nanotubes de carbone (Kim *et al.* (Kim *et al.* 2009)) ou encore de diverses particules métalliques (Charvet *et al.* (Charvet *et al.* 2014)).

1. APM : *Aerosol Particle Mass analyzer*.