



**HAL**  
open science

## Evaluation des incertitudes associées à la mesure granulométrique d'un aérosol par technique SMPS

Loic Coquelin, Laurent Le Brusquet, Nicolas Fischer, C. Motzkus, François Gensdarmes, Tatiana Macé, Séverine Demeyer, Gilles Fleury

► **To cite this version:**

Loic Coquelin, Laurent Le Brusquet, Nicolas Fischer, C. Motzkus, François Gensdarmes, et al.. Evaluation des incertitudes associées à la mesure granulométrique d'un aérosol par technique SMPS. JdS 2013, May 2013, Toulouse, France. 6p. hal-00862338

**HAL Id: hal-00862338**

**<https://centralesupelec.hal.science/hal-00862338v1>**

Submitted on 16 Sep 2013

**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.

# ÉVALUATION DES INCERTITUDES ASSOCIÉES À LA MESURE GRANULOMÉTRIQUE D'UN AÉROSOL PAR TECHNIQUE SMPS

Loïc Coquelin<sup>1\*</sup> & Laurent Le Brusquet<sup>4</sup> & Nicolas Fischer<sup>1</sup> & Charles Motzkus<sup>2</sup> & François Gensdarmes<sup>3</sup> & Tatiana Mace<sup>2</sup> & Séverine Demeyer<sup>1</sup> & Gilles Fleury<sup>4</sup>

*Loic.Coquelin@lne.fr*

<sup>1</sup> *Département de mathématiques et statistiques, Laboratoire National de Métrologie et d'Essais, 29 avenue Roger Hennequin, 78197 Trappes, France*

<sup>2</sup> *Département de qualité de l'air et débitmétrie gazeuse, Laboratoire National de Métrologie et d'Essais, 1 rue Gaston Boissier, 75724 Paris, France*

<sup>3</sup> *Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SCA, LPMA, Gif-sur-Yvette, 91192, France*

<sup>4</sup> *Supélec Sciences des Systèmes - EA4454 (E3S), 3 rue Joliot Curie, 91192 Gif-sur-Yvette, France*

## Résumé.

La détermination de la granulométrie en nombre d'un aérosol (concentration en nombre de particules en fonction du diamètre) à partir de mesures effectuées par un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) est un problème mathématiquement mal posé. Une procédure d'inversion pour l'estimation de ce mesurande fonctionnel est proposée ainsi qu'une méthodologie pour propager l'incertitude résultant à la fois des erreurs de mesure et du manque de connaissances sur la physique sous-jacente au processus de mesure. L'inversion consiste en la décomposition du signal sur une base d'ondelettes discrètes couplée à des techniques de régularisation. Une comparaison entre la méthode développée et une technique de régularisation standard avec contraintes de lissage lorsque l'on considère une distribution de taille simulée avec des pics larges et étroits est proposée. Les résultats montrent un meilleur accord entre la reconstruction moyenne calculée par simulations de Monte-Carlo et la granulométrie originale pour la nouvelle procédure d'inversion.

**Mots-clés.** Incertitudes, inversion, ondelettes discrètes, processus gaussiens auto-corrélés

## Abstract.

The determination of aerosol particle size distributions from SMPS measurements is an ill-posed problem. In this paper, a method for the estimation of size distributions is proposed as well as a methodology to propagate the uncertainty arising from both the measurements errors and the lack of knowledge on the physical models. The inversion procedure lies in a decomposition of the signal on a discrete wavelet basis coupled with regularization techniques. A comparison between the method and a regularization technique using standard smoothness constraints is shown when considering an analytical size distribution with broad and narrow peaks. A better agreement between the mean reconstruction computed via Monte-Carlo simulations and the true size distribution is achieved through the method we developed.

**Keywords.** Uncertainty propagation, discrete wavelets, autocorrelated Gaussian process

## 1. Contexte

Les nanomatériaux et les nanotechnologies représentent un domaine de la recherche scientifique et de l'industrie en pleine expansion exposant ainsi une population plus importante (les travailleurs en milieu industriel, dans les laboratoires de recherche, etc.) aux nanomatériaux manufacturés. Conscient de cet éventuel problème de santé publique, l'ANSES applique le principe de précaution et met ainsi la communauté scientifique à contribution pour évaluer de manière exhaustive les risques associés. Le risque majeur identifié étant associé à l'inhalation dans les lieux de travail, l'ANSES décide de se tourner en priorité vers les équipements de mesure permettant de définir la concentration en nombre de particules en fonction de leurs diamètres (granulométrie en nombre de l'aérosol).

La mesure de la granulométrie en nombre des nanoaérosols est actuellement réalisée au niveau international par un dispositif appelé le SMPS. La technique employée s'articule autour de 2 phases : la sélection des particules et leur détection. La sélection repose sur la faculté des particules aéroportées à migrer à travers un champ électrique (mobilité électrique) et qui est liée aux diamètres des particules considérées. Moyennant un contrôle du champ électrique, il est possible de scruter une gamme de diamètres allant de 1  $nm$  à 1  $\mu m$ . La détection des particules ainsi sélectionnées est ensuite déferée à un compteur à noyaux de condensation. Le résultat obtenu est finalement soumis à une procédure d'inversion afin d'estimer la granulométrie en nombre de l'aérosol étudié.

L'étude présentée se focalise sur l'évaluation de l'incertitude associée à l'estimation de la granulométrie en nombre en sortie de l'inversion. Les enjeux scientifiques sont la création d'une procédure d'inversion robuste couplée avec une prise en charge de nombreuses sources d'incertitude de différentes natures (scalaires, fonctions) afin d'estimer une région de confiance sur un mesurande fonctionnel.

## 2. Modélisation du processus de mesure et procédure d'inversion classique

La réponse de l'instrument pour chaque canal de mesure (ou intervalle de diamètres) s'exprime mathématiquement comme une intégrale de Fredholm de première espèce. Soient  $y_i$ ,  $k_i$  et  $\epsilon_i$  représentant respectivement la réponse de l'instrument, la fonction noyau qui modélise l'intégralité de la physique sous-jacente au processus de mesure et l'erreur de mesure dans le canal  $i$  et enfin  $f$  la granulométrie en nombre de particules que l'on cherche à estimer, alors :

$$y_i = \int_0^{+\infty} k_i(x) f(\ln(x)) d(\ln(x)) + \epsilon_i \quad , i = 1, \dots, m. \quad (1)$$

A partir de l'expression de la réponse de l'instrument définie en (1), une procédure d'inversion standard revient à minimiser le carré de l'erreur quadratique sous hypothèse de bruit blanc gaussien pour chacune des composantes du vecteur  $\epsilon = (\epsilon_i)_{i=1, \dots, m}$ .

Nombre de procédures d'inversion [1,2,3,4] permettent actuellement de résoudre cette difficulté en proposant notamment d'appliquer des méthodes de régularisation combinant un critère d'adéquation aux données et un *a priori* dépendant de l'objet à reconstruire.

Souhaitant estimer  $f$  pour des diamètres représentatifs  $(x_j)_{j=1,\dots,n}$  des canaux de mesure de l'instrument, le problème décrit en (1) prend une forme discrète  $y = K\tilde{f}$ , où  $K = (k_i(x_j))_{i=1,\dots,m}^{j=1,\dots,n} \in R^{m \times n}$  et  $\tilde{f} = (f(x_j))_{j=1,\dots,n} \in R^n$ . L'intégrale est évaluée numériquement par une quadrature de type Simpson ou par une méthode des rectangles. L'estimation aux points de reconstruction choisis est notée  $\hat{f}$ . Elle est la solution d'un problème de minimisation (avec la contrainte de positivité pour chacune des composantes du vecteur reconstruit, id est  $\hat{f}_j \geq 0, \forall j$ ) : trouver  $\tilde{f}$  tel que

$$\hat{f} = \arg \min_{\tilde{f} \geq 0} \{ \|L_\epsilon(y - K\tilde{f})\|^2 + \lambda \|D_2\tilde{f}\|^2 \}, \quad (2)$$

où  $\Gamma_\epsilon^{-1} = L_\epsilon^t L_\epsilon$  est la matrice de variance/covariance des erreurs observées et  $D_2\tilde{f}$  modélise l'*a priori* choisi comme étant l'intégrale de la dérivée seconde de l'énergie approchée numériquement par différences finies. Cet *a priori* a pour but de pénaliser les solutions à variations rapides et donc lisse la reconstruction. Toutefois, l'estimation obtenue a tendance à être sur-régularisée ou sous-régularisée selon la valeur calculée pour le paramètre de régularisation. Dans le premier cas, l'estimation est fortement biaisée avec une variance faible et dans le second cas l'estimation est faiblement biaisée mais avec une variance forte. De plus, il est difficile de contrôler la régularisation par l'intermédiaire d'un seul et unique paramètre.

### 3. Procédure d'inversion proposée

L'idée générale de la méthode développée peut se décomposer en trois étapes. La première est de définir une estimation notée  $\hat{f}_{ms}$  de la granulométrie en nombre par méthode des moindres carrés. La seconde est de décomposer cette estimation sur une base d'ondelettes afin de distinguer les petites et les grandes échelles et ainsi pouvoir régulariser par niveau d'ondelettes. L'*a priori* est ensuite modélisé en hiérarchisant les paramètres de régularisation à estimer : pénalisation forte des basses fréquences et pénalisation faible des hautes fréquences. Enfin, la troisième et dernière étape est l'estimation de paramètres de régularisation multiples. Cette étape est effectuée par une heuristique de façon séquentielle, autrement dit, on scrute un niveau, on détermine le paramètre associé et on passe au niveau suivant en fixant le paramètre calculé précédemment. Le problème ainsi formulé s'écrit alors : trouver  $\tilde{f}$  tel que

$$\hat{f} = \arg \min_{\tilde{f} \geq 0} \{ \|L_\epsilon(y - K\tilde{f})\|^2 + \left( \sum_{k=1}^{n_w-1} \lambda_k \|D_2 d_k \tilde{f}\|^2 \right) + \lambda_{n_w} \left( \|D_2 d_{n_w} \tilde{f}\|^2 + \|D_2 a_{n_w} \tilde{f}\|^2 \right) \}, \quad (3)$$

où  $(a_k)_{k=1,\dots,n_w}$  et  $(d_k)_{k=1,\dots,n_w}$  représentent respectivement les vecteurs des coefficients d'approximation et de détails dans la base d'ondelettes considérées pour le signal d'entrée  $\hat{f}_{ms}$ .

## 4. Stratégie de propagation des Incertitudes

Une fois la procédure d'inversion développée, la deuxième étape va consister à identifier les sources d'incertitude, les modéliser et enfin les propager à travers l'inversion. Les sources sont dissociées en deux sous-groupes correspondant respectivement à la dispersion expérimentale et à la méconnaissance.

### 4.1 Modélisation de la dispersion expérimentale

La prise en charge de la dispersion expérimentale est dépendante du nombre d'observations à disposition. En effet, si  $n_r$  expériences ont été réalisées, on dispose d'un tableau d'observations  $y \in R^{m \times n_r}$ . Le modèle statistique dont on cherche à estimer les paramètres est un processus gaussien noté  $Y$ , non stationnaire, auto-corrélé, tel que :

$$Y \sim N(\mu_y, \Sigma_y),$$

où  $\mu_y \in R^m$  est le vecteur des moyennes des observations sur chacun des canaux et  $\Sigma_y \in R^{m \times m}$  est la matrice de variance/covariance empirique des observations.

Le cas échéant, c'est à dire si une seule observation est présente, un modèle de bruit de mesure considérant uniquement les incertitudes à un instant  $t$  associées au mesurande est développé. Le modèle statistique traduisant la dispersion expérimentale prend alors la forme d'un processus gaussien noté  $Y'$ , non stationnaire, tel que :

$$Y' \sim N(\mu'_y, \Sigma'_y), \text{ avec } \mu'_{y,i} = y_i \exp(y_i \tau_p), \quad i=1, \dots, m$$

$$\Sigma'_y = \text{diag}(\sigma'^2_{y,i}), \text{ avec } \sigma'^2_{y,i} = \mu'_{y,i} \left( 1 + \mu'_{y,i} \left( \left( \frac{\tau_p}{t_c^i} \right)^2 - 2 \left( \frac{\tau_p}{t_c^i} \right) \right) \right), \quad i=1, \dots, m.$$

$\tau_p$  et  $t_c^i$  sont respectivement le temps moyen de paralysie du compteur à noyau de condensation suite au passage d'une particule et le temps de comptage associé au canal  $i$ .

La création de données artificielles va permettre la génération d'un échantillon suffisamment important d'observations, rendant possible les simulations de type Monte-Carlo à partir desquelles une région de confiance pourra être calculée et associée au mesurande.

### 4.2 Modélisation de la méconnaissance

Le groupe nommé méconnaissance englobe plusieurs sources de différentes natures. La méconnaissance provient entres autres de paramètres incertains, mal connus, donc mal estimés, ou encore de théories compétitives pour décrire un seul phénomène physique comme le transport des particules lors de la phase de sélection. Le choix arbitraire d'un modèle parmi  $n$  modèles possibles induit une erreur systématique sur l'estimation finale. Ainsi, pour chaque tirage de Monte-Carlo, une expérience  $y^{[l]}$  est simulée et une matrice d'inversion aléatoire  $K_\theta^{[l]}$  est calculée par tirages dans les lois de probabilité modélisées

pour chacun des paramètres et fonctions du modèle. Une estimation de la granulométrie notée  $\hat{f}^{[l]}$  est finalement réalisée via (3) en considérant  $K = K_\theta^{[l]}$  et  $y = y^{[l]}$ .

La méthodologie employée diffère en ce sens que, communément, l'ensemble des sources sont associées aux observations et la propagation est réalisée à procédure d'inversion fixée.

## 5. Résultats

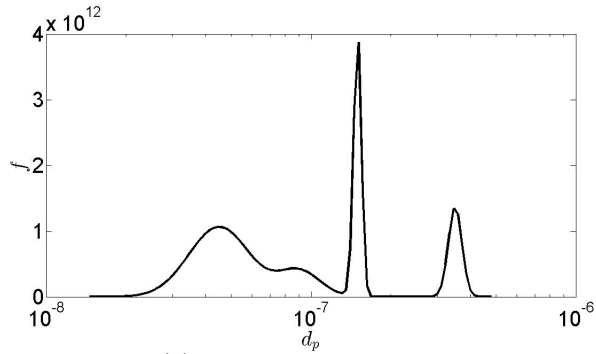
Partant d'une fonction combinant des profils à variations rapides et à variations lentes (figure 1(a)), des observations sont générées (figure 1(b)) et des simulations de Monte-Carlo (figure 1(c)) sont réalisées afin d'obtenir l'estimation moyenne de la granulométrie en nombre et ainsi permettre le calcul de la région de confiance à 95% associée (figure 1(d)). Pour une technique de régularisation standard avec contraintes de lissage sur la reconstruction, un seul paramètre ne permet pas le contrôle à la fois des variations lentes et rapides, c'est pourquoi l'estimation moyenne est biaisée, et, plus problématique encore, la région de confiance associée n'englobe pas la granulométrie originale. En revanche, concernant la méthode proposée, le biais est réduit nettement et devient non significatif au regard des autres sources d'incertitude.

## 6. Conclusion

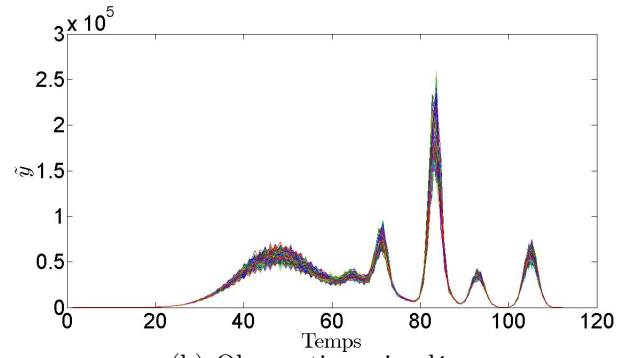
La méthode présentée pour la reconstruction de la granulométrie en nombre d'un aérosol fournit de meilleurs estimateurs car elle offre la possibilité de contrôler plus finement le niveau de régularisation en fonction de la fréquence du signal en entrée ce qui n'est pas le cas pour une procédure de régularisation standard pour laquelle un seul paramètre est à estimer. De plus, le biais introduit par la méthode de régularisation proposée est faible comparé à une méthode classique et devient négligeable par rapport aux autres sources d'incertitude.

## Bibliographie

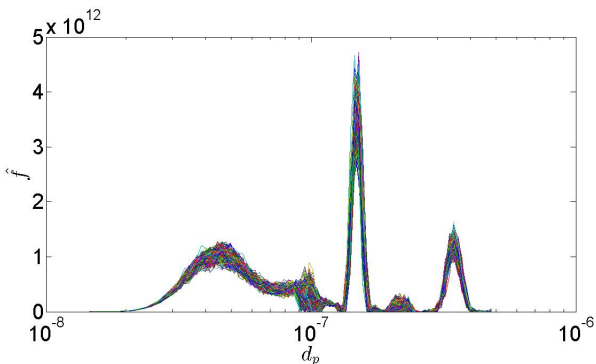
- [1] Seinfeld, J. H et Wolfenbarger, J. K. (1990), *Inversion aerosol size distribution data*, Journal of Aerosol Science, Volume 21, pages 227-247.
- [2] Talukdar, S. S et Swihart, M. T. (2003), *An Improved Data Inversion Program for Obtaining Aerosol Size Distributions from Scanning Differential Mobility Analyzer Data*, Aerosol Science and Technology, Volume 37, pages 145-161.
- [3] Twomey, S. (1975), *Comparison of constrained linear inversion and an iterative non-linear algorithm applied to the indirect estimation of particle size distributions*, Journal of Computational Physics, Volume 30, pages 188-200.
- [4] Voutilainen, A. et Stratmann, F. et Kaipio, J. P. (2000), *A non-homogeneous regularization method for the estimation of narrow aerosol size distributions*, Journal of Aerosol Science, Report series.



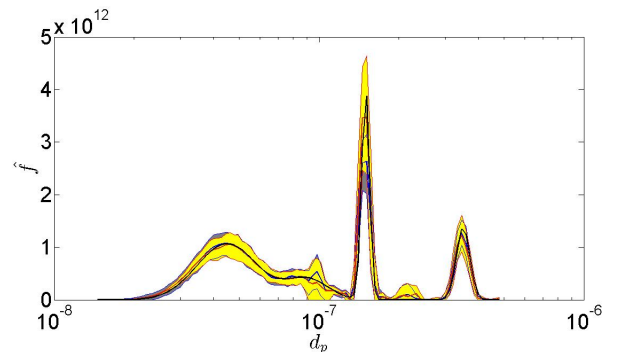
(a) Distribution simulée



(b) Observations simulées



(c) Trajectoires de Monte-Carlo pour la nouvelle procédure d'inversion



(d) Estimations moyennes (bleu pour la méthode standard, rouge pour la nouvelle méthode) et régions de confiance à 95% associées pour chacune des deux procédures d'inversion (gris pour la méthode standard, jaune pour la nouvelle méthode)

FIGURE 1 – Évaluation de l'incertitude de mesure associée à une distribution simulée.