

## UN COUPLAGE GRILLES DE DIFFUSION / COMPTEUR DE NOYAUX DE CONDENSATION POUR L'ESTIMATION DE LA DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE D'AEROSOLS SUBMICRONIQUES

S. BAU<sup>1</sup>, A. CHARVET<sup>2</sup>, A. CHLEBOVA<sup>2</sup>, D. THOMAS<sup>2</sup>, E KOUDOU<sup>3</sup>

<sup>1</sup> INRS, Laboratoire de Métrologie des Polluants, F-54550 Vandoeuvre-lès-Nancy- France

<sup>2</sup> Université de Lorraine, CNRS, LRGP, F-54000 Nancy, France

<sup>3</sup> Université de Lorraine, IECL, F-54000 Nancy, France

\*Courriel de l'orateur : sebastien.bau@inrs.fr

### TITLE

**Coupling diffusion grids with a condensation particle counter for estimating the particle size distribution of submicron aerosols**

### RESUME

L'utilisation croissante des nanomatériaux dans les procédés industriels entraîne la génération d'aérosols submicroniques (diamètre < 1 µm), exposant les travailleurs à des risques d'inhalation. Pourtant, aucun appareil portable et peu coûteux ne permet actuellement de mesurer, en temps réel, la distribution granulométrique en nombre de ces aérosols en milieu professionnel. Cette étude propose une approche combinant des grilles de diffusion et un compteur de noyaux de condensation (CNC) pour répondre à ce besoin. Dans ce couplage, le CNC mesure la concentration en particules non collectée par différents jeux de grilles faisant office de sélecteurs. Un algorithme d'inversion de données permet par la suite de reconstruire la distribution granulométrique à partir des mesures de concentration. Les essais en laboratoire, réalisés avec des aérosols monodispersés de nature variable et pour différentes configurations de grilles, ont permis d'établir un modèle de perméance à implémenter dans l'algorithme. Après une première validation théorique de l'approche, des comparaisons des distributions granulométriques mesurées, en conditions réelles, avec cette approche et un appareil de référence (Nanoscan TSI®), montrent un bon accord. Cette méthode offre une solution peu coûteuse, portable et facile à utiliser pour la surveillance des aérosols en milieu industriel. Les travaux futurs visent à optimiser les configurations de grilles et à valider les performances dans des conditions industrielles encore plus variées.

### ABSTRACT

The growing use of nanomaterials in industrial processes leads to the generation of submicron aerosols (diameter < 1 µm), exposing workers to inhalation risks. However, there is currently no portable, low-cost device capable of real-time measurement of the number size distribution of these aerosols in workplaces. This study presents an approach combining diffusion grids and a condensation particle counter (CPC) to address this need. The CPC measures the particle concentration that passes through different sets of grids acting as selectors. A data inversion algorithm then reconstructs the size distribution from these concentration measurements. Laboratory tests, conducted with monodisperse aerosols of varying materials and for different grid configurations, allow establishing a permeance model for implementation in the algorithm. Following initial theoretical validation, comparisons of size distributions measured under real-world conditions with this coupling and a reference device (TSI® Nanoscan) show satisfying agreement. This method provides a low-cost, portable, and user-friendly solution for monitoring aerosols in industrial environments. Future work will focus on optimizing grid configurations and validating performance under a wider range of industrial conditions.

**MOTS-CLÉS** : métrologie, distribution granulométrique, perméance, sélecteur, inversion de données

**KEYWORDS**: metrology, particle size distribution, penetration, selector, data inversion

### 1. INTRODUCTION

L'utilisation de plus en plus fréquente des nanomatériaux dans les procédés industriels, associée à la génération indésirable et non maîtrisée d'aérosols durant certaines opérations unitaires augmentent les situations d'exposition des travailleurs à des particules dispersées dans l'air. La métrologie des polluants particulières, tant à visée terrain que recherche, s'est démocratisée durant les dernières décennies et met en œuvre des techniques, souvent complexes, nécessitant une classification (inertielle, électrique ...) en amont de la détection (optique, électrique ...) des particules. Malgré le panel d'équipements disponibles, il n'existe néanmoins aucun appareil de mesure en temps réel de la distribution granulométrique en nombre des aérosols submicroniques qui soit à la fois adapté au terrain, portable, robuste, accessible à des non spécialistes et peu coûteux.

La mesure de cette distribution granulométrique des aérosols est pourtant d'importance car la taille des particules influence leur dynamique de transport, leur capacité à diffuser ou absorber la lumière, leur interaction avec les surfaces biologiques, ainsi que leur temps de résidence dans l'atmosphère. Les aérosols submicroniques sont particulièrement préoccupants en raison de leur capacité à pénétrer profondément dans les voies respiratoires après inhalation. La connaissance de la distribution granulométrique d'un aérosol est donc cruciale pour pouvoir évaluer les risques potentiels liés à l'exposition à ces particules. L'absence d'un appareil adapté à ces besoins crée un vide important en matière de surveillance des aérosols submicroniques sur les lieux de travail. En effet, les instruments actuellement disponibles sont soit trop coûteux, trop complexes à utiliser, ou ne permettent pas une mesure en temps réel adaptée aux environnements industriels, limitant de fait la capacité des entreprises à évaluer et à gérer les risques associés à l'exposition à ces particules. La nécessité d'un appareil de mesure fiable, simple et performant pour le suivi des aérosols submicroniques en conditions industrielles représente aujourd'hui un enjeu majeur pour la protection de la santé des travailleurs. La mise en place d'un tel dispositif permettrait d'identifier et minimiser les expositions, et de contribuer à une gestion proactive des dangers liés à l'usage et à la présence de nanomatériaux dans les procédés industriels.

## 2. APPROCHE

Pour pallier le manque des méthodes classiques, la présente approche consiste à identifier les moyens de sélection et de détection des particules les plus adaptés au terrain, puis au développement d'un outil de traitement de données. Le choix du détecteur s'est porté sur les compteurs de noyaux de condensation (CNC), appareils de référence pour la mesure de la concentration en nombre des particules submicroniques. Ce type de compteur donne une valeur totale de la concentration particulaire (sans distinction de taille) et doit donc être couplé à un ou plusieurs dispositifs de sélection, approche similaire à celle impliquée au sein des SMPS, appareils de référence pour la mesure de la distribution granulométrique des aérosols submicroniques. La sélection est, quant à elle, basée sur les propriétés diffusionnelles des particules et est réalisée à l'aide de différents jeux de grilles.

Ce couplage, dénommé batterie de diffusion, a fait l'objet de nombreux travaux depuis plus de 50 ans [1-4] mais le traitement mathématique nécessaire à la détermination d'une distribution granulométrique est particulièrement complexe [5-7]. Il repose ainsi sur la mise en œuvre d'appareils relativement peu coûteux et facilement déployables en atmosphères professionnelles, étant donné l'existence de CNC portatifs voire individuels.

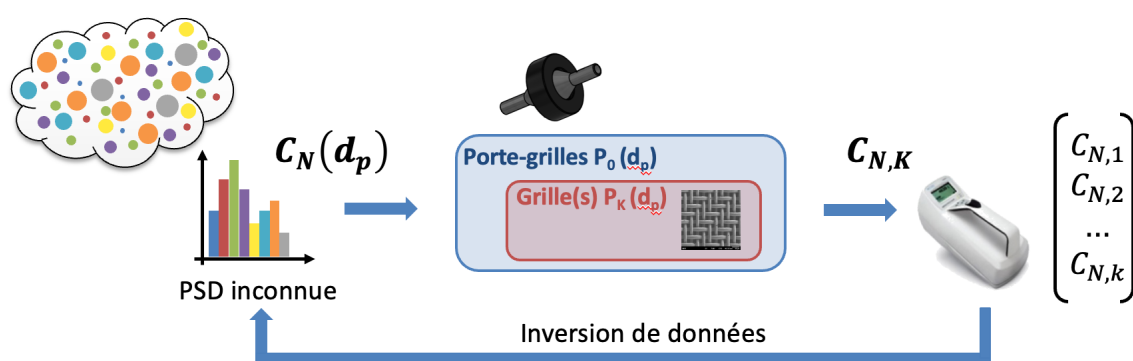


Figure 1 : Principe du couplage sélecteur / détecteur pour la détermination de la distribution granulométrique d'aérosols submicroniques

Pour valider la pertinence de ce couplage (Figure 1), les étapes indispensables consistent à :

- caractériser la perméance du porte-grilles (i.e. la probabilité qu'une particule de taille donnée parvienne à traverser le dispositif),
- caractériser la perméance de différents types de grilles et de l'association en série d'un nombre variable de sélecteurs,
- modéliser la perméance afin de prédire la probabilité de collecte d'aérosols submicroniques face à toutes les configurations d'associations de grilles envisagées,
- développer un outil d'inversion de données pour déterminer la distribution granulométrique à partir des différentes concentrations totales mesurées par le CNC en aval des sélecteurs,
- valider l'approche en laboratoire, à l'aide d'aérosols maîtrisés, et sur le terrain face à des aérosols plus complexes,
- optimiser le nombre de configurations mise en œuvre (recherche du meilleur compromis entre nombre de mesures séquentielles et précision recherchée).

### 3. RESULTATS ET DISCUSSION

#### 3.1. Caractérisation de la perméance des sélecteurs

Après étude de grilles en inox et en nylon d'ouverture de mailles variable, le choix s'est arrêté sur des grilles en inox formées par le croisement perpendiculaire de fils sous forme d'un maillage double. Leurs propriétés principales sont le diamètre des fils (36  $\mu\text{m}$ ) et la largeur des mailles (50  $\mu\text{m}$ ). Le porte-média conçu spécifiquement pour cette étude présente une géométrie conique afin de mieux répartir le flux d'aérosol sur toute la section de la grille. Il est fabriqué en acier inoxydable et se compose de deux parties, entre lesquelles se trouve une plaque en inox percée d'orifices permettant de soutenir mécaniquement les grilles.

Le dispositif, équipé d'un nombre de grilles variable (entre 0 et 20), est exposé à des aérosols monodispersés de taille variable (entre 10 et 150 nm), de nature variable (KCl, graphite, cuivre, fer, argent, titane) et à différents débits (0,3, 0,7 et 1,5 L/min), correspondant à des débits classiques d'aspiration des CNC commerciaux. Cette détermination expérimentale de la perméance, point essentiel de l'approche, est réalisée en laboratoire, par mesure séquentielle de la concentration en amont et en aval du dispositif. Quelques-uns des nombreux résultats expérimentaux sont présentés en Figure 2.

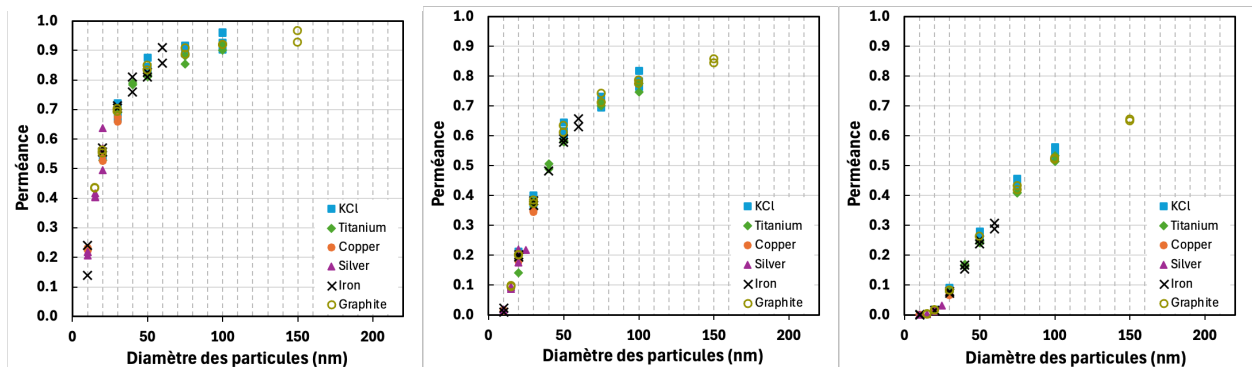


Figure 2 : Perméances expérimentales de particules submicroniques monodispersées au travers d'associations en série de grilles en inox (gauche : 3 grilles ; milieu : 8 grilles ; droite : 20 grilles)

Comme escompté, la perméance de sélecteurs décroît avec la taille des particules (synonyme d'une plus grande efficacité de rétention des particules les plus fines) et le nombre de grilles associées en série. Il est intéressant de noter que, pour un nombre restreint de grilles (1 ou 2), les résultats sont moins reproductibles ce qui peut sans doute s'expliquer par une moins bonne répartition spatiale de l'écoulement dans le porte-grilles du fait de la très faible résistance à l'écoulement en présence de peu de grilles.

Ces résultats ont permis l'établissement d'un modèle de perméance indispensable au traitement des données et permettant de prédire la perméance du dispositif, quels que soient le nombre de grilles, la taille des particules et le débit du CNC. A noter que le dispositif seul (sans aucune grille) présente une perméance proche de l'unité ce qui permet de s'en affranchir lors de la modélisation.

#### 3.2. Développement d'un algorithme d'inversion de données

La détermination de la distribution granulométrique repose sur le développement d'une procédure d'inversion de données, similaire au traitement de données mis en œuvre pour les impacteurs en cascade. Sur le plan mathématique, il s'agit de déterminer la distribution  $f_N(d_p)$  qui satisfait le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} \frac{C_{N,1}}{C_{N,0}} = \int_0^{\infty} f_N(d_p) P'(d_p) P_1(d_p) dd_p \\ \vdots \\ \frac{C_{N,i}}{C_{N,0}} = \int_0^{\infty} f_N(d_p) P'(d_p) P_i(d_p) dd_p \\ \vdots \\ \frac{C_{N,k}}{C_{N,0}} = \int_0^{\infty} f_N(d_p) P'(d_p) P_k(d_p) dd_p \end{cases}$$

où  $C_{N,k}$  correspond à la concentration en nombre (particules/ $\text{cm}^3$ ) mesurée en aval du sélecteur k. Ce vecteur de concentrations contient ainsi k concentrations correspondantes aux k configurations testées. Chacun des sélecteurs est caractérisé par une perméance,  $P_k(d_p)$ , fonction du nombre de grilles constituant le sélecteur.

La méthode des moindres carrés non négatifs avec régularisation de Tikhonov [8, 9] a été employée pour la résolution de ce système d'équations. Cette méthode permet notamment de s'affranchir d'une hypothèse sur la forme de la distribution granulométrique cherchée (loi normale ou log-normale). La validation de l'inversion de données a dans un premier temps été réalisée théoriquement. La méthode consiste à (i) fixer une distribution granulométrique, (ii) calculer les concentrations qui seraient théoriquement mesurées en aval des  $k$  sélecteurs (chacun constitué d'un nombre variable de grilles) et (iii) implémenter ces concentrations dans l'outil d'inversion de données. La distribution granulométrique issue de l'inversion de données est ensuite comparée à la distribution originelle. Ce travail a été réalisé pour 35 distributions granulométriques théoriques d'aérosols submicroniques dont 15 présentent une distribution log-normale monomodale (A), 10 une distribution log-normale bimodale (B) et 10 une distribution quelconque (C). Des exemples sont proposés sur la Figure 3.

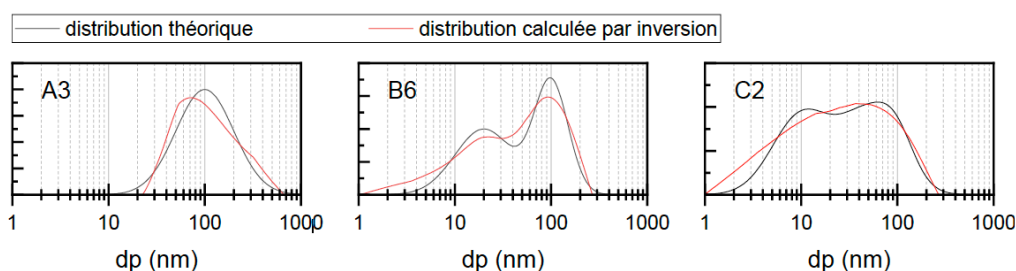


Figure 3 : Validation de l'inversion de données sur 3 cas théoriques

#### 4. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le présent travail a montré la pertinence d'un couplage entre des grilles de diffusion et un compteur pour la détermination de la distribution granulométrique d'aérosols submicroniques. Le déploiement de la méthodologie lors de quatre campagnes de terrain sur des aérosols variés (brouillards d'huile, aérosols émis par le broyage de végétaux, aérosols de combustion, fumées de soudage) a mis en évidence la bonne estimation de la distribution granulométrique, comparativement à un appareil de référence (Nanoscan TSI®). Ces résultats devront être consolidés lors d'autres mesures en atmosphères professionnelles mais aussi en laboratoire sur des aérosols davantage maîtrisés en termes de taille et de concentration.

Un travail conséquent doit encore être mené pour l'optimisation de ce couplage, et notamment dans la définition du nombre idéal de configurations (sélecteurs) mises en œuvre lors d'une mesure et également le nombre de grilles implémentées dans chaque sélecteur. À terme, ces travaux devraient permettre la conception d'un prototype associé à un outil d'inversion de données « clé en main » facilement déployable dans les environnements de travail. Un tel système permettra alors de mieux documenter la fraction submicronique d'aérosols présente dans les atmosphères professionnelles.

#### REFERENCES

- [1] KNUTSON E. O. - History of diffusion batteries in aerosol measurements. *Aerosol Sci Technol*, 1999, **31**, 83-128.
- [2] THOMAS J. W. - The diffusion battery method for aerosol particle size determination. *J Colloid Sci*, 1955, **10**, 246-255.
- [3] SINCLAIR D. & HOOPES G. S. - A Novel Form of Diffusion Battery. *Am Indus Hyg Assoc J*, 1975, **36**, 39-42.
- [4] FELDPAUSCH P., FIEBIG M., FRITZSCHE L., & PETZOLD A. - Measurement of ultrafine aerosol size distribution by a combination of diffusion screen separators and condensation particle counters. *J Aerosol Sci*, 2006, **37**, 577-597.
- [5] SIPKENS T., OLFERT J., & ROGAK S. - Inversion methods to determine two-dimensional aerosol mass-mobility distributions: A critical comparison of established methods. *J Aerosol Sci*, 2020, **140**, 105484.
- [6] MERCER T. & GREENE T. - Interpretation of diffusion battery data. *J Aerosol Sci*, 1974, **5**, 251-255.
- [7] ONISCHUK A., BAKLANOV A., VALIULIN S., MOISEENKO P., & MITROCHENKO V. - Aerosol diffusion battery: The retrieval of particle size distribution with the help of analytical formulas. *Aerosol Sci Technol*, 2018, **52**, 165-181.
- [8] IVANOV V. K., VASIN V. V., & TANANA V. P. (2013) *Theory of linear ill-posed problems and its applications* (Walter de Gruyter).
- [9] PARK Y., REICHEL L., RODRIGUEZ G., & YU X. - Parameter determination for Tikhonov regularization problems in general form. *J Comput and App Math*, 2018, **343**, 12-25.