

PROPOSITION D'UN PROTOCOLE DE VERIFICATION DES SPECTROMETRES AERODYNAMIQUES ET MISE EN ŒUVRE SUR 18 APPAREILS

A. Boivin¹ et S. Bau¹

¹Laboratoire de Métrologie des Aérosols, Institut National de Recherche et de Sécurité, 54500 Vandoeuvre, France

*Courriel de l'orateur : alexis.boivin@inrs.fr

TITLE

Proposal of a verification procedure of aerodynamic particle sizers and application to a set of 18 devices

RESUME

Cette étude vise à proposer un protocole opérationnel pour vérifier, en laboratoire, les granulomètres aérodynamiques (APS, TSI modèles 3320 & 3321), qui permettent de mesurer la distribution granulométrique des aérosols entre 0,5 et 20 μm . Associé à des critères de performance, le protocole a été appliqué à un ensemble de 18 spécimens d'APS, afin de s'assurer de l'applicabilité de la procédure proposée. Les résultats montrent des écarts entre les mesures issues des APS et les valeurs de référence, soulignant la nécessité de qualifier les performances des APS ainsi que la variabilité inter-spécimens.

ABSTRACT

This study aims at proposing an operational protocol to verify, in the laboratory, aerodynamic particle sizers (APS, TSI models 3320 & 3321), which allow the size distribution of aerosols to be measured in the range from 0.5 to 20 μm . Associated with performance criteria, the protocol was applied to a set of 18 specimens of APS, in order to ensure the applicability of the procedure proposed. The results show discrepancies between the measurements and reference values, highlighting the need for qualifying the performances of APS as well as the inter-specimen variability.

MOTS-CLÉS : APS, précision en taille, précision en concentration, protocole de vérification / **KEYWORDS**: APS, sizing accuracy, concentration accuracy, verification protocol

1. CONTEXTE ET OBJECTIFS

Cette étude s'inscrit dans le contexte général de l'acquisition d'une expertise sur les performances de l'instrumentation en temps réel pour la mesure des aérosols. Dans l'air des lieux de travail, ces derniers couvrent une gamme de taille très large, qui s'étend de quelques nanomètres à quelques micromètres (Bau, et al., 2015). Il apparait donc que seul un couplage de techniques de mesures complémentaires reposant sur différents principes physiques offre la possibilité de couvrir ces trois ordres de grandeur. Ces dix dernières années, l'utilisation de techniques de mesure de la distribution granulométrique des aérosols s'est amplifiée, notamment dans le contexte de santé au travail et dans l'environnement.

Développé il y a 40 ans (1982), l'Aerodynamic Particle Sizer® (APS, TSI modèles 3300, 3310, 3320 puis 3321) permet de déterminer, en temps réel, la distribution du nombre de particules d'un aérosol en fonction de leur diamètre équivalent aérodynamique (0,5 à 20 μm) ; elle résulte de la mesure du temps de vol des particules entre deux faisceaux laser dans un écoulement d'air accéléré (TSI, 2013). L'APS est un instrument très utilisé pour de nombreuses applications : aérosol atmosphérique, air intérieur, filtration, exposition professionnelle, caractérisation des poudres, performance de dispositifs de prélèvement, etc.

Quelques études concernant l'efficacité de mesure des APS ont été menées en laboratoire (Amendariz & Leith, 2002; Peters & Leith, 2003; Volckens & Peters, 2005). Pour autant, il existe à ce jour très peu d'intercomparaisons sur les performances de mesure des APS. En effet, les travaux récents de Pfeifer et al. (2016) témoignent d'écarts de l'ordre de $\pm 10\%$ en termes de mesure de taille sur des aérosols calibrés entre 0,9 et 3 μm , tandis que la précision sur le comptage pose question (variabilité inter-spécimens jusqu'à 60%). Dans ce contexte, les objectifs de ces travaux sont :

- De mettre au point un protocole de vérification des APS en générant des aérosols dont la taille doit couvrir la gamme de mesure de l'APS (0,5 – 20 μm). Les résultats sont exprimés, pour la taille, en comparant les données expérimentales aux diamètres certifiés des billes de PSL (polystyrène latex) générées et pour la concentration, en comparant les données expérimentales aux concentrations mesurées par un appareil de référence étalonné.
- De mettre en œuvre ce protocole sur une série d'appareils (INRS et partenaires de différents organismes de recherche en France) de sorte de pouvoir in fine en définir des critères de bon fonctionnement. A ce jour, ce type de travaux n'a pas d'équivalent en France.

2. PROPOSITION D'UN PROTOCOLE DE VERIFICATION DES APS

Le protocole de vérification des APS proposé se déroule en quatre étapes : vérification du zéro, vérification des débits, vérification en taille et vérification en concentration.

0. Avant toute intervention, l'appareil est mis en chauffe pendant au moins 15 min avec la pompe interne en fonctionnement.
1. Une vérification du zéro de l'APS est réalisée en appliquant un filtre HEPA sur la buse d'entrée du système et en intégrant le nombre d'événements sur une durée de 5 minutes.
2. L'APS possède deux pompes internes, il est nécessaire de vérifier les débits de prélèvement de l'aérosol (Aerosol Flow) et le débit de gainage (Sheath Flow) qui conditionnent la justesse de la mesure. Le débit total (Total Flow) est aussi mesuré pour information (Figure 1). Les débits sont vérifiés par un débitmètre à bulle de savon étalonné (Gilibrator®, cellule standard), 10 mesures sont réalisées pour établir une moyenne.

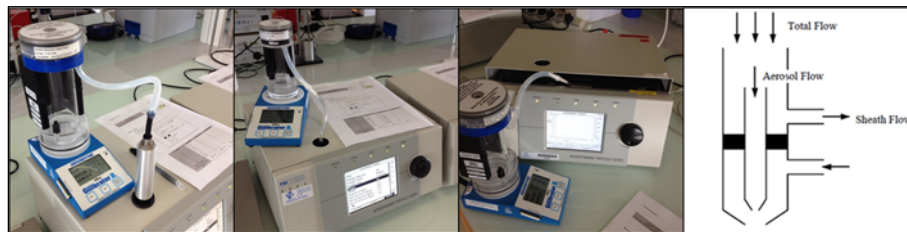


Figure 1 : Photos des montages de l'étape de vérification des débits (Total Flow, Aerosol Flow et Sheath Flow) et schéma descriptif de la buse d'entrée de l'APS (étape 2)

3. Pour la vérification en taille de l'instrument, une préparation préalable est nécessaire pour pouvoir générer en voie sèche les particules de référence. Six tailles de microsphères de PSL monodispersées (de 0,7 μm à 15 μm) sont préparées en dispersant quelques gouttes de la suspension de microsphères de PSL monodispersées (Thermo Scientific, Duke Standards Microsphere Size Standards, NIST Traceable Mean Diameter) dans 50 ml d'eau MilliQ (18,2 M Ω .cm), le tout est ensuite filtré au travers d'un filtre polycarbonate de 0,2 ou 0,8 μm de porosité. Le filtre est enfin placé dans une boîte de Pétri et étuvé à 55°C pendant au moins 4 heures. Il est important de noter que les diamètres certifiés (données fabricant établies par microscopie associées à une valeur d'incertitude élargie à $k = 2$) sont assimilés au diamètre équivalent en volume D_{ev} , qui est ensuite converti en diamètre aérodynamique D_{ae} au moyen de la relation suivante :

$$D_{ae} = D_{ev} \sqrt{\frac{C_c(D_{ev})}{C_c(D_{ae})} \cdot \frac{\rho_p}{\rho_0} \cdot \frac{1}{\chi}}$$

avec $\chi = 1$ le facteur de forme (sphères) et $\rho_p = 1,05 \text{ g/cm}^3$ (PSL). Dans cette relation, C_c représente le facteur de correction de Cunningham. Des observations en microscopie électronique ont par ailleurs été réalisées pour vérifier que l'étuvage n'a pas d'incidence sur le diamètre des particules. Les microsphères de PSL monodispersées certifiées sont ensuite générées en voie sèche sous forme d'aérosols au travers d'un venturi (Small Scale Powder Disperser, TSI 3433, (TSI, 2003)). Pour cette opération, et comme l'illustre la Figure 2, l'APS est retourné pour minimiser le temps de transport des particules entre la sortie du générateur et l'entrée de l'APS, et par conséquent les pertes de particules par dépôt. Pour chaque génération, au moins 6 mesures de 10 secondes sont réalisées à l'APS. Pour chaque mesure, le diamètre aérodynamique modal est déterminé par un ajustement log-normal ; les six mesures sont ensuite moyennées, puis comparées aux diamètres aérodynamiques obtenus à partir des diamètres certifiés des microsphères de PSL monodispersées.

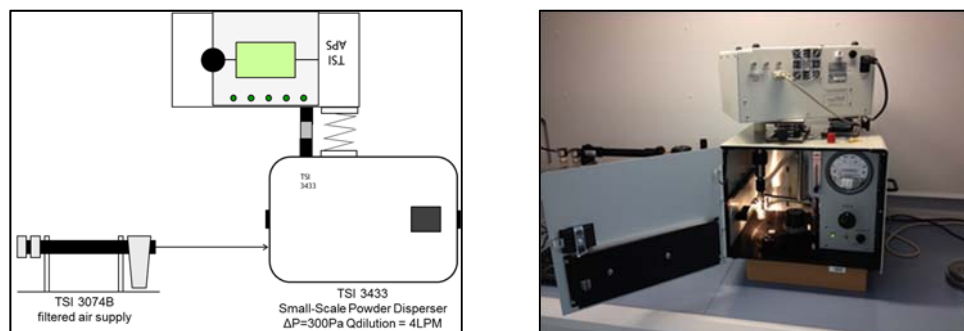


Figure 2 : Schéma et photo de montage de l'étape de vérification en taille de l'APS (étape 3)

4. La dernière étape consiste à vérifier l'instrument en concentration, où une suspension de microsphères de PSL monodispersée de 0,7 µm est générée par atomisation (Atomizer 3076 TSI®). La concentration mesurée par l'APS est comparée à la concentration mesurée par un Compteurs de Noyaux de Condensation (CNC) étalonné. La génération par atomisation apportant un fort bruit de fond de fines particules, un sélecteur de mobilité électrique (DMA, 3081 TSI®) est ajouté pour sélectionner l'aérosol visé. De ce fait, une dilution est ajoutée à la ligne de prélèvement de l'APS (Figure 3) pour limiter le débit au travers du DMA. Quatre paliers de concentration sont réalisés entre environ 100 et 1000 #/cm³, sur une durée de l'ordre de 10 minutes.

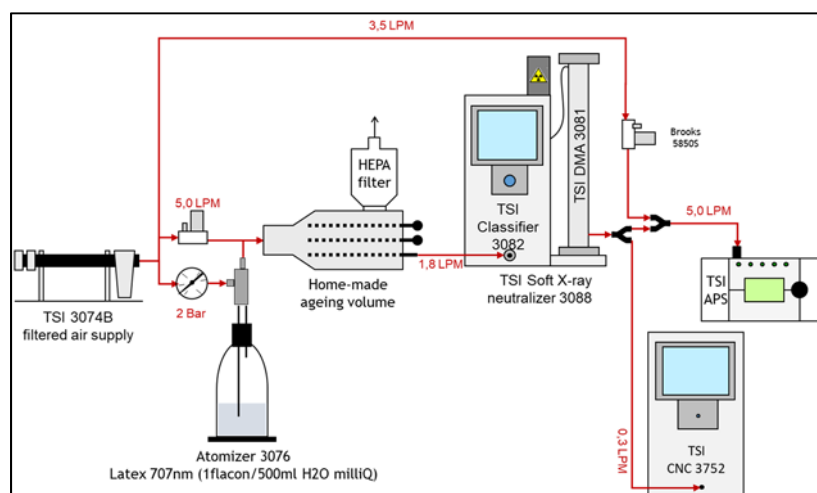


Figure 3 : Schéma de montage de l'étape de vérification en concentration (étape 4)

Les critères de validation proposés sont les suivants:

1. écart relatif inférieur à ± 1 % pour le débit total et le débit de gainage, et ± 10 % pour le débit d'aérosol,
2. moins de 25 particules comptées sur une période de 5 minutes sur les événements de comptage 1 et 2¹, soit une concentration en nombre inférieure à 10^{-3} #/cm³ (résolution de la concentration de l'APS),
3. écart relatif inférieur à $\pm 7,5$ % sur le diamètre modal, soit ± 1 canal de l'instrument ;
4. écart relatif inférieur à ± 10 % sur les valeurs de concentrations en nombre.

Les données sont traitées, pour un appareil donné, et représentées sur un ensemble de quatre graphes selon un masque générique, où chacune des mesures est associée à son incertitude élargie ($k = 2$).

3. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Le protocole présenté précédemment a été mis en application sur 18 appareils, constitués de 15 modèles 3321 et 3 modèles 3320.

La Figure 4 présente les résultats des écarts relatifs sur le diamètre modal des particules pour tous les essais, sous la forme de boîtes à moustaches, en différenciant les appareils selon la date de leur dernière maintenance (moins d'un an en haut, plus de deux ans en bas). Le nombre de points indiqué tient compte des répétitions effectuées sur plusieurs appareils. La zone grisée correspond à la tolérance de $\pm 7,5$ % fixée pour ce paramètre. On remarque sur la Figure 4 que 91 % des valeurs de diamètres se situent dans la zone de tolérance pour les appareils maintenus depuis moins d'un an, contre 77 % pour ceux dont la maintenance remonte à plus de deux ans.

Une analyse similaire a été menée sur les débits et conduit aux mêmes observations : 94 % des mesures de débit d'aérosol se trouvent dans l'intervalle de tolérance (± 10 %) pour les appareils maintenus depuis moins d'un an, contre 64 % pour ceux dont la maintenance remonte à plus de deux ans.

Ces résultats mettent en évidence la nécessité de faire réaliser un calibrage périodiquement de façon à assurer la fiabilité des mesures. Afin d'en déterminer la fréquence, un suivi mensuel sur une durée de 15 mois a été réalisé. Si une dérive est observée, un nettoyage en profondeur de l'appareil permet néanmoins de réduire les écarts mesurés sur l'ensemble des paramètres (débits, diamètre, concentration en nombre).

Enfin, la variabilité inter-spécimens (étendue/médiane) observée sur 18 appareils a été mesurée à 36 % sur le débit (tous débits confondus) et à 33 % sur les mesures de taille (toutes tailles confondues). Concernant la concentration en nombre, des écarts très variables ont été relevés sur une gamme de +27 % à -97 %, avec une tendance à sous-estimer les concentrations (près de 80 % des cas) de 15 % en moyenne ($n = 93$).

¹ Ces événements correspondent aux détections laser faibles et normales par rapport au seuil défini par TSI. Ils excluent ainsi les particules dont la taille est supérieure à la gamme de mesure, ainsi que les situations conduisant à la coïncidence (concentrations $> 10^3$ #/cm³). Ce sont ces deux événements qui sont utilisés pour établir la granulométrie de l'aérosol.

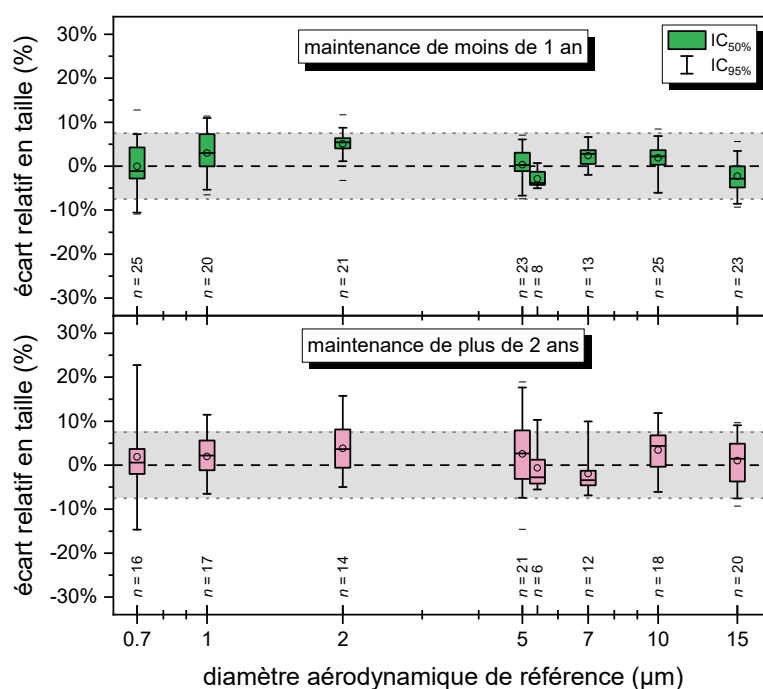


Figure 4 : Boîtes à moustaches des écarts relatifs en taille (étape 3) observés pour les différents appareils étudiés, discriminés en fonction de la date de dernière maintenance

4. CONCLUSION

Cette étude visait à élaborer un protocole de vérification des spectromètres aérodynamiques (APS, TSI), et de le mettre en application sur une série d'appareils afin de caractériser leurs performances et de proposer des critères de bon fonctionnement. En effet, cette technologie est régulièrement mise en œuvre au laboratoire de Métrologie des Aérosols, notamment dans le cadre de la mesure des efficacités d'échantillonnage de dispositifs de prélèvement, mais également pour la caractérisation de la distribution granulométrique d'aérosols divers (en bancs d'essais ou en atmosphères professionnelles).

Pour ce faire, un protocole opérationnel en quatre étapes a été élaboré. Il est notamment basé sur la génération d'aérosols de PSL monodispersés entre 0,7 et 15 µm afin de procéder à la vérification en taille, et la production d'un aérosol monodispersé de PSL calibré de 0,7 µm pour la vérification en concentration. En complément, ce protocole intègre la vérification des débits ainsi que du zéro de l'appareil. Le protocole proposé peut être mis en application de manière périodique ou en préalable à une campagne de mesure, et de quantifier une éventuelle dérive au cours du temps.

Grâce au soutien de partenaires issus de divers instituts de recherche, ce protocole a été mis en application sur 18 spécimens d'APS, illustrant que la méthodologie développée est robuste et transportable. Chaque étape étant associée à des tolérances, les performances de chacun des appareils ont ainsi pu être quantifiées.

Remerciements

Les auteurs remercient les partenaires suivants pour le prêt de leur APS dans le cadre de ces travaux : le Laboratoire National de métrologie et d'Essais (LNE), le Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP), le Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA Grenoble) et la Direction Générale de l'Armement (DGA/MNRBC).

Références

- Amendariz, A. J., & Leith, D. (2002). Concentration measurement and counting efficiency for the aerodynamic particle sizer 3320. *Journal of Aerosol Science*, 33, 133-148.
- Bau, S., Witschger, O., Galland, B., & Martin, P. (2015). Métrologie en temps réel de substances chimiques au poste de travail: intérêts et limites. *Hygiène et Sécurité du Travail*, 239, 6-10.
- Peters, T., & Leith, D. (2003). Concentration measurement and counting efficiency of the aerodynamic particle sizer 3321. *Journal of Aerosol Science*, 34, 627-634.
- Pfeifer, S., et al. (2016). Intercomparison of 15 aerodynamic particle size spectrometers (APS 3321): uncertainties in particle sizing and number size distribution. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9, 1545-1551.
- TSI. (2003). Small-Scale Powder Dispenser Model 3433. *Instruction Manual*, Revision E.
- TSI. (2013). Aerodynamic Particle Sizer Spectrometer Model 3321. *User's Manual*, Revision H.
- Volckens, J., & Peters, T. (2005). Counting and particle transmission efficiency of the aerodynamic particle sizer. *Journal of Aerosol Science*, 36, 1400-1408.