# INTERCOMPARAISON DE LA MESURE DU DIAMETRE AERODYNAMIQUE PAR IMPACTEURS

G. Dougniaux<sup>1</sup>, C. Bodiot<sup>1</sup>, B. Dhieux Lestaevel<sup>1</sup>, R. Wahl<sup>1</sup>, A. Nuboer<sup>1</sup>, A. Kort<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SCA, Gif-sur-Yvette, 91192, France

\*amel.kort@irsn.fr

# TITLE

### Intercomparison of aerodynamic diameter measurement by impactors

## RESUME

Dans le cadre d'études expérimentales en lien avec l'aérodispersion de contaminants particulaires, il est important d'avoir une mesure robuste de la granulométrie des aérosols en termes de diamètre aérodynamique et de concentration massique. Les impacteurs, largement utilisés pour cette mesure, sont simples d'utilisation. Ils doivent toutefois être qualifiés et intercomparés pour produire des données fiables.

Pour ce faire, des aérosols fluorescents ont été générés. La concentration massique des dépôts sur les filtres d'un impacteur Andersen et de deux impacteurs en cascade basse pression (DLPI) a été déterminée par fluorimétrie. Enfin, les paramètres des distributions granulométriques (diamètre aérodynamique médian massique et écart-type géométrique) ont été déterminés par la méthode de Henry et par un ajustement selon une loi log-normale. Cette communication présente les résultats de l'intercomparaison des impacteurs du laboratoire.

#### ABSTRACT

In the context of experimental studies related to the airborne dispersion of particulate contaminants, it is important to have a robust measurement of aerosol particle size in terms of aerodynamic diameter and mass concentration. Impactors, widely used for this measurement, are simple to use. However, they need to be qualified and intercompared to produce reliable data.

For this purpose, fluorescent aerosols were generated. The mass concentration of the deposits on the filters of an Andersen impactor and two low pressure cascade impactors (DLPI) was determined by fluorimetry. Finally, the parameters of the particle size distributions (mass median aerodynamic diameter and geometric standard deviation) were determined by Henry's method and by a lognormal fit. This paper presents the results of the intercomparison of the laboratory.

MOTS-CLÉS : Intercomparaison, DLPI, impacteur Andersen / KEYWORDS : Intercomparaison, DLPI, Andersen impactor

# 1. INTRODUCTION

Le paramètre essentiel intervenant dans les processus de dépôt des particules dans le système respiratoire est le diamètre aérodynamique (Heyder et al., 1980). Or, il n'existe pas actuellement de chaîne d'étalonnage pour cette dimension raccordée au système international d'unités.

Dans le cadre d'études en lien avec l'aérodispersion de contaminants particulaires menées par l'IRSN, il est donc important d'avoir une mesure robuste et fiable de la distribution granulométrique des aérosols en diamètre aérodynamique.

Cette mesure peut être effectuée en utilisant des appareils de mesure temps réel de type Aerodynamic Particle Sizer APS, impacteur à micro-orifice à dépôt uniforme MOUDI ou ELPI (*Electrical Low Pressure Impactor*) mais également en différé avec des impacteurs en cascade (Andersen, basse pression DLPI). Ces derniers sont plus simples d'utilisation et d'entretien, ne nécessitant ni alimentation ni pilotage par ordinateur.

Une intercomparaison a donc été organisée afin d'évaluer la performance des méthodes de mesure en utilisant le parc d'instruments du Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols de l'IRSN. Tous ces instruments prélèvent les mêmes aérosols. Leurs réponses sont analysées et comparées entre elles en utilisant le score zêta (Amarouche, 2015). Les aérosols sont générés par un atomiseur (TSI 3076) pour les particules inférieures à 1  $\mu$ m et par un nébuliseur à ultrasons SINAPTEC 1000 kHz pour les particules supérieures à 1  $\mu$ m, à partir de solutions aqueuses de chlorure de potassium (KCI) marquées à la fluorescéine sodée.

Le diamètre aérodynamique médian en masse (DAMM) et l'écart-type géométrique ( $\sigma_g$ ) sont déterminés pour chaque instrument. Pour les impacteurs, la masse des dépôts sur les filtres est mesurée par fluorimétrie. Cette méthode permet de mesurer des masses de particules déposées très significativement inférieures à celles requises par une pesée.

Finalement, les paramètres des distributions granulométriques en diamètre aérodynamique sont déterminés par la méthode de Henry et par un ajustement selon une loi log-normale.

Cette communication présente les résultats obtenus par cette première intercomparaison sur le parc d'instruments du laboratoire, en se focalisant sur l'un des cinq essais réalisés.

## 2. MATERIEL ET METHODES

## 2.1. Description du banc expérimental

Le banc ETNA a été choisi pour réaliser cette intercomparaison. La figure 1 présente un schéma de l'installation. C'est un banc aéraulique confiné permettant de travailler avec des aérosols de façon sécurisée et sans interférence avec le bruit de fond constitué par l'aérosol atmosphérique ambiant. Le banc est constitué d'une grande chambre de test (0,48 m<sup>3</sup>) avec un débit d'air en circuit fermé pilotable de 100 à 300 m<sup>3</sup>/h. L'installation fonctionne par défaut à 100 % en air de recirculation avec des systèmes de filtration à très haute efficacité H14 (Camfil).



# Figure 1 : représentation de l'installation ETNA

À la chambre de mesure sont raccordés les instruments par des cannes de prélèvement isocinétique. Le tableau 1 présente l'ensemble des instruments utilisés pour l'intercomparaison. A noter que le suivi temps réel de la distribution granulométrique est assuré par un SMPS (*Scanning Mobility Particle Sizer – TSI*) pour les aérosols inférieurs à 1  $\mu$ m et par un APS pour ceux supérieurs à 1  $\mu$ m. Ces instruments sont également utilisés pour l'intercomparaison au même titre que les trois impacteurs.

ldentifiant de l'instrument	Instrument	Mesurande	Gamme de mesure			
1	Impacteur Andersen Mark II (Tisch)	diamètre aérodynamique	0,4 – 9 μm 8 canaux			
2	DLPI+ (Dekati)	diamètre aérodynamique	0,006 – 10 μm 15 canaux			
3	DLPI (Dekati)	diamètre aérodynamique	0,03 – 10 μm 13 canaux			
4	SMPS (TSI 3082)	diamètre de mobilité électrique	0,01 – 1 μm			
	APS (TSI 3021)	diamètre aérodynamique	0,5 – 20 μm			

# ableau 1 : instruments utilisés pour l'intercomparaison

# 2.2. Production des aérosols

Les aérosols sont produits par un atomiseur ou un nébuliseur (suivant la distribution granulométrique de l'aérosol ciblé), à partir de solutions de KCl (Merck Millipore) marquées à la fluorescéine sodée (VWR). Le tableau 2 présente les cinq aérosols produits pour cette intercomparaison. À toutes les solutions sont ajoutés 30 µL de solution de fluorescéine sodée à 100 g/L. Cette dernière permettra de quantifier la masse de sel déposée sur chaque étage des impacteurs.

Tableau 2 : caractéristiques des solutions pour la génération des aérosols							
Aérosol	Sel	Concentration en sel g/L	Volume de fluorescéine sodée μL	Générateur			
А	KCI	0,1	30	atomiseur TSI 3076			
В	KCI	8	30	atomiseur TSI 3076			
С	KCI	40	30	atomiseur TSI 3076			
D	KCI	200	30	nébuliseur à ultrasons SINAPTEC 1000 kHz			
E	KCI	300	30	nébuliseur à ultrasons SINAPTEC 1000 kHz			

## 2.3. Analyse par fluorimétrie

À la fin d'un essai, les filtres des impacteurs Andersen, DLPI et DLPI+ sont relevés et préparés pour la mesure de la masse. Pour ce faire, chaque filtre est plongé dans 100 mL puis 10 mL de solution d'eau ammoniaquée (pH 9) pendant 1 h. Une aliquote de la solution, contenant désormais toute la fluorescéine du filtre, est mise dans la cellule de mesure d'un fluorimètre. La quantité de lumière mesurée permet de remonter à la concentration en fluorescéine dans la solution, donc sur le filtre, et *in fine* à la masse d'aérosols déposée sur le filtre. Chaque mesure est répétée trois fois. La solution d'eau ammoniaquée est préparée en diluant 100 mL d'ammoniaque (28%, GPR RECTAPUR - VWR) dans 10 L d'eau ultra pure obtenue avec le système de purification d'eau Millipore IQ 7000. Le pH de la solution d'eau ammoniaquée est régulièrement contrôlé afin de s'assurer qu'il reste supérieur à 9.

## 3. RESULTATS EXPERIMENTAUX

## 3.1. Distribution granulométrique des aérosols A et C

La mesure de la distribution granulométrique est répétée trois fois afin de s'assurer de la stabilité de la génération en diamètre et en concentration.

Les diamètres aérodynamiques médians en masse et les écart-types géométriques sont calculés à partir des distributions mesurées pour chaque impacteur par deux méthodes : la droite de Henry et l'ajustement log-normal. Ainsi, la figure 2 (gauche) montre la distribution granulométrique de l'aérosol A, 1<sup>ère</sup> répétition, pour l'impacteur Andersen. La figure 2 (droite) montre la distribution granulométrique de l'aérosol C, 3<sup>ème</sup> répétition, pour ce même impacteur Andersen. On constate que les diamètres aérodynamiques médians sont relativement proches ; toutefois, la méthode de Henry semble sous-estimer le diamètre aérodynamique médian et surestimer l'écart-type géométrique, par rapport à l'ajustement par une loi log-normale.



Figure 2 : illustration des distributions mesurées avec l'impacteur Andersen pour les aérosols A (gauche) et C (droite), avec deux méthodes de calculs différentes pour la détermination du DAMM et de σ<sub>g</sub>

La figure 3 présente l'ensemble des résultats pour l'aérosol E, en termes de mesure du diamètre aérodynamique médian en masse et de l'écart-type géométrique. Les points sont légèrement décalés par rapport à leurs abscisses pour des raisons de visibilité. En plus des instruments identifiés précédemment, l'identifiant 0 correspond à la valeur assignée, et le 5 à la valeur attendue par rapport à la solution et au générateur utilisé. La valeur assignée et son incertitude sont estimées à partir de la moyenne des réponses de l'ensemble et de l'écart-type de l'ensemble, pondérée des variances des valeurs des instruments. On constate que les résultats semblent assez proches, bien que ceux calculés avec la méthode de Henry semblent être systématiquement éloignés.



Figure 3 : diamètre aérodynamique médian en masse (gauche) et écart-type géométrique (droite) pour l'aérosol E

## 3.1. Résultat de l'intercomparaison pour l'aérosol E

Afin d'évaluer la performance des instruments pour cette intercomparaison, nous utilisons le score zêta. Celui-ci permet de comparer les résultats de mesure sans référence et est défini selon l'équation 1 :

$$\zeta = \frac{X_{lab} - X_{ass}}{\sqrt{u_{lab}^2 + u_{ass}^2}}$$
(1)

avec :

- X<sub>lab</sub> : résultat de mesure,
- X<sub>ass</sub> : valeur assignée,
- u<sub>lab</sub> : incertitude-type associée au résultat de mesure,
- u<sub>ass</sub> : incertitude-type associée à la valeur assignée.

L'incertitude sur le résultat de mesure est estimée à partir de l'écart-type des répétitions d'un essai pour un instrument. Les conclusions du score zêta sont définies ainsi :

- $|\zeta| \le 1$ : l'aptitude de la méthode est satisfaisante,
- $-1 < |\zeta| < 2$ : l'aptitude de la méthode est discutable,
- $|\zeta| \ge 2$ : l'aptitude de la méthode est non-satisfaisante.

La figure 4 présente le score zêta pour le diamètre aérodynamique et l'écart-type géométrique. Ainsi, la méthode par ajustement log-normal (LN) de la mesure impacteurs est satisfaisante selon le score zêta, ainsi que la valeur moyenne donnée par l'APS (instrument n°4, croix) et la valeur attendue du générateur. Cependant, la méthode par droite de Henry donne des résultats plus discutables pour la valeur de DAMM et de  $\sigma_g$ .



Figure 4 : résultats de l'intercomparaison pour l'aérosol E (diamètre aérodynamique médian en masse (gauche) et écart-type géométrique (droite))

# 4. CONCLUSION

Une première intercomparaison du diamètre aérodynamique a été réalisée. Basée sur le parc d'instruments du laboratoire, elle a permis d'éprouver l'essai depuis la mise en place d'un banc dédié à l'analyse des résultats. Les paramètres des distributions granulométriques en diamètres aérodynamiques et en écarts-types géométriques sont déterminés par la méthode de Henry et par un ajustement selon une loi log-normale. La méthode par ajustement log-normal pour la mesure par impacteurs est satisfaisante selon le score zêta, ainsi que la valeur moyenne donnée par l'APS et la valeur attendue du générateur. La méthode par droite de Henry donne des résultats plus discutables.

## REFERENCES

Amarouche, S. (2015). Comparaisons interlaboratoires en étalonnage et en essai - Retour d'expérience. 17th International Congress of Metrology, CIM 2015, 6, 1–5. https://doi.org/10.1051/metrology/20150002006

Heyder, J., Gebhart, J., Rudolf, G., & Stahlhofen, W. (1980). Physical factors determining particle deposition in the human respiratory tract. Journal of Aerosol Science, 11, 505–5015.