

COMPARAISON INTER-LABORATOIRES DEDIEE AUX MESURES DE DISTRIBUTIONS GRANULOMETRIQUES D'AEROSOLS AU MOYEN DE COMPTEURS OPTIQUES

S. Bau¹, V. Crenn², S. Jacquinot³, C. Debert⁴, D. Petitprez⁵, L. Leclerc⁶, A. Miffre⁷, A. Rose⁸, A. Tomas⁹, A. Kort¹⁰, D. Hebert¹¹, A. Joubert¹², F. Deschamps¹³, S. Ritoux¹⁴, L. Ait Ali Yahia¹⁵ et F. Gaie-Levrel^{16#}

¹INRS, Laboratoire de Métrologie des Aérosols, 54500 Vandoeuvre les Nancy

²ADDAIR, 78530 Buc

³CEA, Laboratoire de Mesures, Sécurisation et Environnement, 38054 Grenoble Cedex 9

⁴Airparif, Laboratoire de métrologie et innovation, 75004 Paris

⁵Laboratoire PC2A, UMR 8522 CNRS/Université de Lille, 59655 Villeneuve d'Ascq

⁶Mines Saint-Etienne, Univ Jean Monnet, INSERM, U1059 Sainbiose; Centre CIS, 42023 Saint-Etienne

⁷Institut Lumière Matière, UMR 5306 CNRS/U. Lyon, 69622 Villeurbanne cedex

⁸Service des Laboratoires de Santé Environnementale, Laboratoire Polluants Chimiques, 75013 Paris

⁹Institut Mines-Télécom, Université de Lille, Center for Energy and Environment, 59000 Lille

¹⁰IRSN, Laboratoire de Physique et de métrologie des aérosols, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex

¹¹IRSN, Laboratoire Expérimental de Recherche et d'expertise sur les Transferts des radionucléides dans le milieu Atmosphérique, 50130 Cherbourg En Cotentin

¹²IMT Atlantique, GEPEA, CNRS UMR 6144, BP 20722, 44307 Nantes Cedex 3

¹³DGA Maîtrise NRBC, 91710 Vert-le-Petit

¹⁴CSTB, Direction Santé Confort, 77447 Marne-la-Vallée Cedex 2

¹⁵CERTES, Université Paris-Est Créteil, 94010 Créteil

¹⁶LNE, Direction de la Métrologie Scientifique et Industrielle, 75724 Paris Cedex 15

#Adresse actuelle: Airparif, 7 rue Crillon, 75004 Paris

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

TITLE

Interlaboratory study devoted to aerosol number size distribution measurement using optical particle counters

RESUME

Dans le cadre de la mise au point et de la validation de méthodes pour la mesure des aérosols, un exercice d'intercomparaison portant sur la mesure de la distribution granulométrique des aérosols solides impliquant des granulomètres optiques a été organisé à l'échelle nationale. Cet essai inter-laboratoires s'est déroulé sur une durée de 18 mois et a porté sur trois échantillons. Seize partenaires ont été impliqués avec 35 appareils de mesure. Les mesures ont été normalisées par rapport à une mesure réalisée simultanément avec un spectromètre commun de contrôle lors des expérimentations menées chez chaque partenaire.

ABSTRACT

As part of the development and validation of methods for measuring aerosol size distributions, an interlaboratory comparison involving optical particle counters was organized at the French national level. This exercise took place over a period of 18 months and covered three types of samples. 16 partners were involved with 35 instruments. The measurements were standardized in relation to measurements carried out simultaneously with a control spectrometer during the experiments performed by each partner.

MOTS-CLES : compteur optique de particules, comparaison interlaboratoires / **KEYWORDS**: optical particle counter, interlaboratory comparison

1. CONTEXTE ET OBJECTIFS

Ces travaux s'inscrivent dans le contexte de la mise au point et de la validation de méthodes pour la mesure des aérosols. En l'absence d'étalons dédiés à la vérification et au contrôle permettant d'assurer le bon fonctionnement de l'instrument à tester, il s'agissait d'organiser un exercice d'intercomparaison à l'échelle nationale portant sur la **mesure de la distribution granulométrique en nombre des particules** impliquant différents types de **compteurs optiques**.

Le principe de fonctionnement des compteurs optiques de particules (COP) repose sur une méthode optique et correspond à la détection et l'analyse de la lumière diffusée par les particules lors des interactions entre un faisceau laser de longueur d'onde définie et les particules focalisées qui traversent la zone de mesure (Coffey and Pearce 2010; Szymanski, Nagy, and Czitrovsky 2009). Chaque impulsion détectée correspond ainsi au passage d'une particule et permet de réaliser un suivi temporel de la concentration en nombre. L'intensité de lumière diffusée à un angle donné est également analysée pour chaque impulsion et permet d'estimer la taille

des particules et de les classer dans différents canaux de comptage. La taille est exprimée sous la forme d'un diamètre équivalent optique (d_{opt}), qui correspond le plus souvent au diamètre de la particule sphérique d'indice de réfraction donné et diffusant la même intensité de lumière que la particule mesurée. Les COP permettent ainsi de mesurer la distribution granulométrique d'un aérosol de manière continue en fonction du temps. Les particules les plus petites (d_{opt} inférieur à environ $0,3 \mu m$) ne diffusent pas une intensité de lumière suffisante, c'est pourquoi la gamme d'intégration des COP est généralement comprise entre $\sim 0,3$ et $\sim 10 \mu m$.

La comparaison inter-laboratoires s'est déroulée entre octobre 2021 et mai 2023. Elle a porté sur trois échantillons de poudres :

- une silice amorphe monodispersée fournie par le LNE (Angströmsphère),
- des billes de verre (Spheriglass 5000) fournies par l'INRS (Potters),
- une poudre colorée de féculé de maïs (poudre Holi verte) fournie par la DGA (color people).

Seize partenaires se sont engagés dans ces essais, comme présenté dans le Tableau 1. Au total, ce sont 35 appareils de mesure qui ont été impliqués. De manière volontaire, les instruments ont été pris en l'état sans volonté d'inclure exclusivement des instruments fraîchement étalonnés.

Tableau 1. Appareils impliqués dans l'intercomparaison.

Participant (par ordre alphabétique)	Nombre d'appareils
Addair	2
Centre d'Etudes et de Recherches en Thermique, Environnement et Systèmes (CERTES)	0**
Centre Scientifique et Technique du Bâtiment	0*
Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA)	2
Direction Générale de l'Armement (DGA)	11
Ecole des Mines de Saint Etienne (EMSE)	1
Ecole nationale supérieure Mines-Télécom Atlantique Bretagne Pays de la Loire (IMT Atlantique)	1
Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN Cherbourg)	1
Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN Saclay)	2
Institut Lumière Matière (ILM)	1
Institut Mines Télécom Nord Europe (IMT Nord-Europe)	2
Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS)	7
Laboratoire de PhysicoChimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère (PC2A)	1
Laboratoire National de métrologie et d'Essais (LNE)	0*
Observatoire de la qualité de l'air en Île-de-France (Airparif)	2
Service des Laboratoires de Santé Environnementale (SLSE)	2

* seule la mesure de contrôle a été réalisée, ** défaillance de l'appareil de contrôle au moment des essais.

2. PROTOCOLE EXPERIMENTAL ET MESURES DE CONTROLE

2.1. Banc d'essais

Le générateur impliqué dans cette comparaison inter-laboratoires est basé sur le principe de l'agitateur vortex initialement développé par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), sous le brevet international WO2013092816. Le générateur VS-1000 a été prêté par la société Addair pendant une année afin de l'impliquer dans ces essais (Leglise et al. 2022). Au sein du générateur, l'air filtré et séché est injecté à l'intérieur du réceptacle de l'agitateur Vortex contenant l'échantillon, ce qui induit une mise en suspension de la poudre. Ce volume est relié à un moteur vibrant afin d'assurer une agitation stable et efficace. La seconde zone, de forme conique, est soumise à un flux ascendant où les particules sont triées selon leur taille par élutriation verticale. Le débit d'injection d'air a été fixé à 4 L/min pour cette étude et la fréquence de vibration à 60 Hz ($\sim 12 \text{ V}$). Un volume tampon a été couplé en aval du générateur afin de lisser les instabilités temporelles (Figure 1). Un diviseur de débit permet ensuite le couplage de différents instruments en parallèle, dont un analyseur Fidas mobile mis à disposition par l'INRS et faisant office d'instrument commun de contrôle.

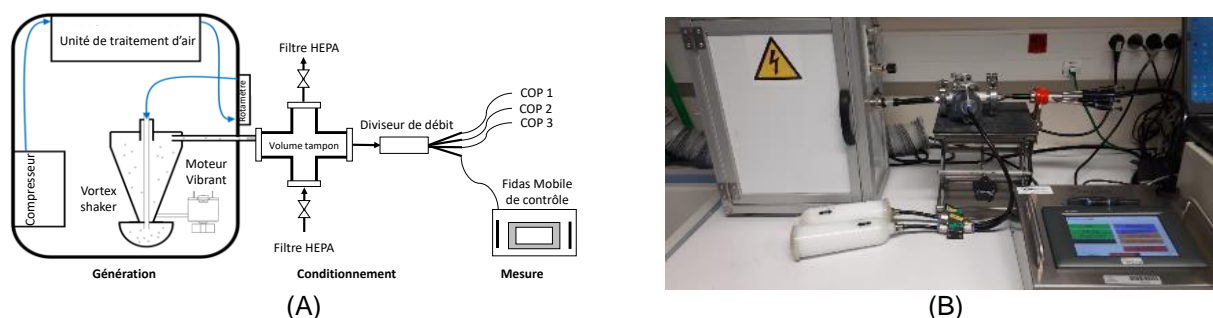


Figure 1. (A) Schéma et (B) Photographie du banc de mesure incluant le générateur d'aérosols, le volume tampon, le diviseur de débit et l'instrument de contrôle Fidas mobile.

2.2. Distributions granulométriques de référence

La Figure 2 présente les distributions granulométriques relatives en nombre mesurées par le Fidas mobile de contrôle pour les trois échantillons impliqués dans cette comparaison interlaboratoires, toutes mesures confondues (28 à 29 répétitions selon les poudres). Ces distributions granulométriques ont été ajustées par des lois lognormales, et sont caractérisées par des diamètres modaux de $0,34 \mu\text{m} \pm 0,01 \mu\text{m}$; $3,05 \mu\text{m} \pm 0,37 \mu\text{m}$ et $3,74 \mu\text{m} \pm 0,38 \mu\text{m}$ respectivement.

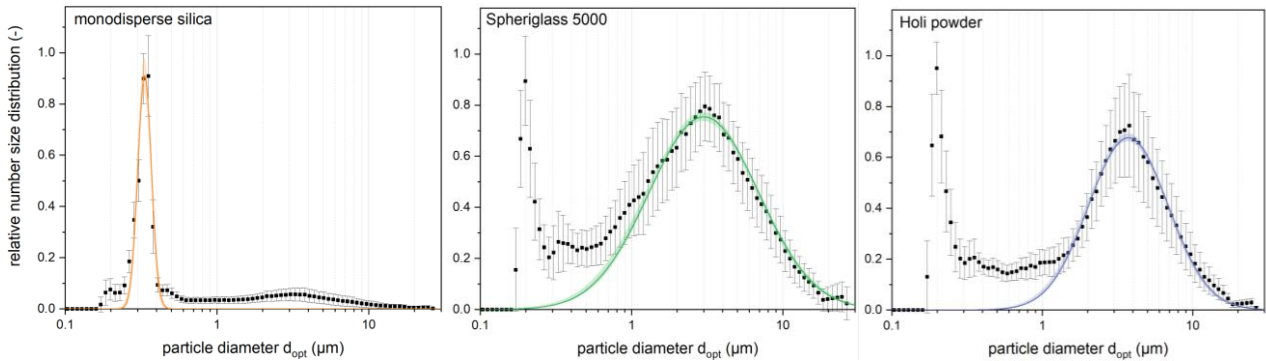


Figure 2. Distributions granulométriques en nombre moyennes issues de l'instrument de contrôle (Fidas mobile) pour les trois aérosols d'essais. Les barres d'erreurs correspondent aux écarts-types.

3. RESULTATS PRINCIPAUX ET DISCUSSION

Pour tenir compte de la variation de la génération lors des essais réalisés dans les locaux de chacun des partenaires, les mesures ont été normalisées par rapport au diamètre modal issu de la mesure avec le Fidas mobile de contrôle réalisée simultanément.

Concernant l'aérosol généré à partir de l'échantillon de silice monodispersée (données non montrées), l'ensemble des mesures se situe dans un intervalle de $\pm 30\%$ par rapport à la mesure de contrôle, exceptée pour une mesure. Cette adéquation entre les différents appareils et celui pris comme contrôle peut s'expliquer par le caractère monodispersé de l'aérosol d'essai (écart-type géométrique de la distribution $\sim 1,11$, cf. Figure 2). Une dispersion plus significative est observée sur les ratios des diamètres modaux obtenus sur les deux autres échantillons que sont les billes de verre (données non montrées) et la poudre Holi. Pour cet aérosol, les résultats sont présentés à la Figure 3 ; les ratios des diamètres modaux varient entre 0,42 et 1,9.

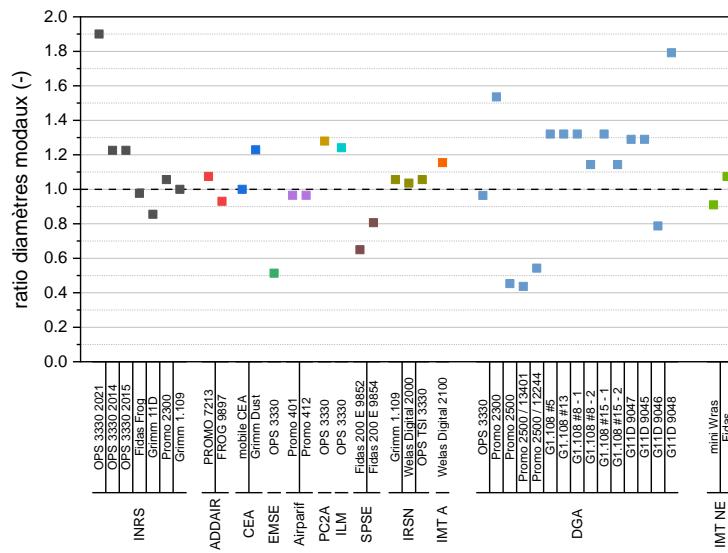


Figure 3. Ratios des diamètres modaux calculés pour les différents COP impliqués pour l'échantillon de poudre Holi, en lien avec la mesure du Fidas mobile de contrôle.

Une analyse prenant en compte la variabilité de la mesure de contrôle a été conduite sur la base du critère de performance Z-score (Thompson and Wood 2020; ISO 2022), défini à l'aide de la relation suivante :

$$Z = \frac{d_{modCOP_i} - d_{modCOP^*}}{2\sigma(d_{modCOP^*})} \quad (1)$$

où $d_{mod_{COP_i}}$ représente le diamètre modal issu de la mesure du spectromètre optique i , $d_{mod_{COP^*}}$ celui issu de la mesure de contrôle (Fidas mobile), et $\sigma(d_{mod_{COP^*}})$ l'écart-type de répétabilité provenant de l'ensemble des mesures de contrôle. En fonction de la valeur de Z , les mesures peuvent alors être classées en zones :

- $|Z| > 3$: la mesure est insatisfaisante (zone de danger),
- $2 < |Z| \leq 3$: la mesure peut être considérée comme douteuse (zone de surveillance),
- $1 < |Z| \leq 2$: la mesure est cohérente et dans une zone acceptable,
- $|Z| \leq 1$: valeur optimale, performance excellente.

La Figure 4 présente la proportion d'appareils situés dans les différentes zones de performances pour les trois aérosols d'essais impliqués. Plus de trois quarts des compteurs optiques étudiés se situent dans la zone de Z-score allant de 0 à 2 pour les aérosols générés à partir des échantillons de billes de verre et de poudre Holi, étant donné les écart-types de répétabilité $\sigma(d_{mod_{COP^*}})$ élevés (respectivement 0,36 et 0,38 μm). Cette proportion est plus faible (~ 50%) pour l'aérosol de silice monodispersée, qui était caractérisé par une distribution ayant un diamètre modal inférieur à 500 nm et un écart-type de répétabilité plus faible (0,01 μm).

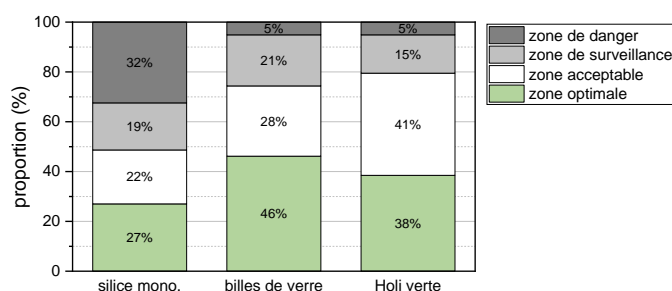


Figure 4. Répartition dans les différentes zones de performances (Z-score) des instruments impliqués.

Les instruments impliqués dans cette intercomparaison ont été regroupés par familles correspondant chacune à une technologie et un algorithme de traitement du signal. Les résultats sont présentés à la Figure 5 pour l'aérosol émis par l'échantillon de billes de verre, où chaque point correspond à l'appareil d'un partenaire.

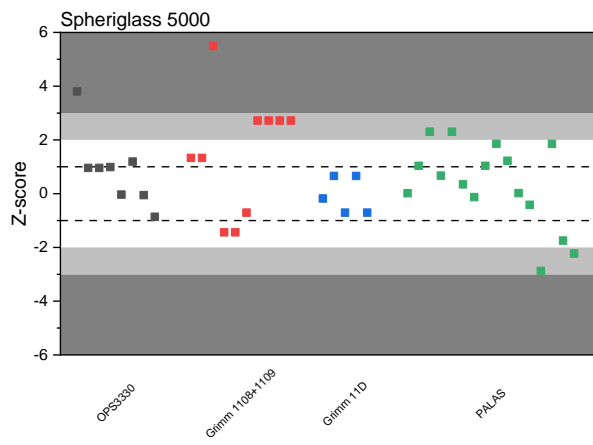


Figure 5. Indices de performances des différentes familles d'instruments pour l'aérosol de billes de verre.

Parmi les paramètres pouvant être à l'origine des écarts observés par rapport à la mesure de contrôle, le degré d'expertise de l'opérateur en charge des essais, ainsi que la durée depuis le dernier étalonnage / maintenance de l'appareil sont à considérer.

4. REFERENCES

- Coffey, C.C., and T.A. Pearce. 2010. 'Direct-reading methods for workplace air monitoring', *Journal of Chemical Health and Safety*, 17 (3): 10-21.
- ISO. 2022. '13528:2022 - Méthodes statistiques utilisées dans les essais d'aptitude par comparaison interlaboratoires'.
- Leglise, J., V. Crenn, D. Le Dur, and F. Gensdarmes. 2022. 'Vers un passage au TRL 8 d'un disperseur de poudre de type vortex shaker', *35ème Congrès Français sur les Aérosols CFA2022*.
- Szymanski, W.W., A. Nagy, and A. Czitrovsky. 2009. 'Optical particle spectrometry—Problems and prospects', *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110: 918-29.
- Thompson, Michael, and Roger Wood. 2020. 'International Harmonized Protocol for Proficiency Testing of (Chemical) Analytical Laboratories', *Journal of AOAC INTERNATIONAL*, 76: 926-40.