



HAL
open science

Développement et caractérisation de deux fluxmètres gazeux pour la mesure de faibles débits référencés à la pression atmosphérique

Djilali Bentouati

► **To cite this version:**

Djilali Bentouati. Développement et caractérisation de deux fluxmètres gazeux pour la mesure de faibles débits référencés à la pression atmosphérique. Sciences de l'ingénieur [physics]. 2012. dumas-01114572

HAL Id: dumas-01114572

<https://dumas.ccsd.cnrs.fr/dumas-01114572>

Submitted on 9 Feb 2015

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.

Version 1.5

Djilali BENTOUATI

Laboratoire national de métrologie et d'essais, FRANCE

djilali.bentouati@lne.fr

22 juin 2012

CONSERVATOIRE NATIONAL DES ARTS ET MÉTIERS
Paris

MÉMOIRE

présenté en vue d'obtenir

le **DIPLÔME D'INGÉNIEUR**

SPÉCIALITÉ : MESURE-ANALYSE

OPTION : INSTRUMENTATION QUALITÉ

par

Djilali BENTOUATI

**DÉVELOPPEMENT ET CARACTÉRISATION DE DEUX
FLUXMÈTRES GAZEUX POUR LA MESURE DE FAIBLES
DÉBITS RÉFÉRENCÉS À LA PRESSION ATMOSPHERIQUE**

Soutenu le 20 avril 2012

JURY

PRÉSIDENT

M. JUNCAR Patrick

Professeur des universités, CNAM

MEMBRES

M. BOINEAU Frédéric

Ingénieur, LNE

M. BRIAUDEAU Stephan

Maître de conférences, CNAM

M. OTAL Pierre

Ingénieur, LNE

M. PLIMMER Mark

Maître de conférences, CNAM

"À mon père"

Résumé

Les mesures de faibles débits gazeux référencés à la pression atmosphérique sont peu caractérisées à ce jour. Dans le cadre de projets européens, des laboratoires nationaux de métrologie approfondissent leurs connaissances dans ce domaine afin de répondre au besoin de traçabilité des débits de fuite quelle que soit la nature du gaz considéré. Au Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), la traçabilité est bien établie pour les mesures de débit du gaz frigorigène R-134a, entre $3 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ à $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$, avec le fluxmètre infrarouge. Par ailleurs, le LNE dispose d'un fluxmètre gazeux à pression constante dont la gamme de mesure est comprise entre $4 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ à $8,2 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$. Cette étude porte d'une part sur l'extension du fluxmètre infrarouge à la mesure de débit de CO_2 et d'autre part sur la caractérisation métrologique du fluxmètre gazeux à pression constante pour la mesure des débits gazeux référencés à la pression atmosphérique. Des comparaisons entre ces deux références primaires de débits sont effectuées sur leur étendue de recoupement à l'aide de fuites de transfert, pour le R-134a et le CO_2 . Des mesures complémentaires effectuées sur une fuite capillaire étalonnée en hélium et R-134a par le Laboratoire national de métrologie italien, pour les besoins d'un projet commun de recherche, assurent la validation métrologique du calcul d'incertitude établi pour les deux fluxmètres du LNE.

Mots clés :

Fluxmètre gazeux, détection de fuite, métrologie, flux gazeux, spectroscopie infrarouge, fuite de référence, vide.

Abstract

Measurements of low gas flow rates referred to atmospheric pressure have been poorly characterized thus far. In the context of European research projects, some national metrology institutes are deepening their knowledge to meet traceability requirements of leak flow rates regardless of the type of gas. At the Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), traceability is well established for flow measurements of the refrigerant gas R-134a, between $3 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ to $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$, using a infrared flowmeter. Moreover, LNE also has a constant pressure flowmeter for flow measurements between $4 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ to $8,2 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ for any gas. The aim of the first part of this study is to extend an infrared flowmeter for flow measurement of CO_2 . The second part is the metrological characterization of the constant pressure flowmeter for measurement of gas flow rates referred to atmospheric pressure. Comparisons between these two primary flow rates standards are performed in their common measurements range with transfer leaks using R-134a and CO_2 . Additional measurements performed with a capillary leak previously calibrated with helium and R-134a by the Italian metrology institute, for the purposes of a joint research project, ensure the metrological validation of the uncertainty's calculation established for the LNE flowmeters.

Keywords :

Gas flowmeter, leak detector, metrology, gas flow rates, infrared spectroscopy, standard leak, vacuum.

Remerciements

En premier lieu, je tiens à exprimer toute ma gratitude envers Pierre Otal, responsable du département Pression-Vide, pour toute la confiance témoignée à mon égard depuis mon arrivée au sein de son équipe, le conduisant à me proposer cette étude qui me permet de finaliser ma formation d'ingénieur CNAM avant de poursuivre sur une thèse.

Je remercie également son prédécesseur, Jean-Claude Legras, qui en un an m'a beaucoup appris sur la métrologie des pressions. Je remercie également les responsables successifs du pôle mécanique Vincent Barbier et Jean-Marc Moschetta pour leurs contributions au bon déroulement du projet.

Les différents travaux réalisés par Frédéric Boineau ces dernières années m'ont été d'une utilité inestimable. J'ai apprécié toutes les discussions que nous avons pu avoir au sujet des fuites et débits. Je lui adresse donc mes plus sincères remerciements pour toutes ses contributions à la réalisation de ce mémoire ainsi que pour sa patience et sa disponibilité.

J'exprime ma reconnaissance à tous les membres du jury. En particulier Patrick Juncar qui me fait l'honneur d'en être le président après m'avoir énormément appris en tant que professeur et Mark Plimmer, mon tuteur, pour l'intérêt qu'il porte à ce projet mais aussi pour son écoute, ses conseils, sa disponibilité et la rapidité de ses réponses. Je remercie également tous les enseignants du CNAM avec lesquels se fut un plaisir d'approfondir mes connaissances.

Je remercie également Isabelle Morgado pour la réalisation du fluxmètre infrarouge ainsi que pour la préparation initiale du projet qui, avec une description efficace

REMERCIEMENTS

des tâches associées, m'a permis d'aborder cette étude sereinement.

Mes différentes visites dans les laboratoires partenaires m'ont été très utiles pour ce mémoire. Je remercie donc Karl Jousten, responsable du département vide de la PTB et coordinateur du projet, ainsi que Mercede Bergoglio responsable du département Pression-Vide de l'INRIM.

Ce mémoire aborde des aspects relevant du domaine de la chimie. Je remercie donc Christophe Sutour pour la fabrication des mélanges gazeux étalons, pour ses précieux conseils sur les analyseurs de gaz ainsi que pour le matériel que j'ai pu lui emprunté pour réaliser des essais.

Je suis également reconnaissant envers Kamel Dougdag de la Direction des ressources techniques et informatiques du LNE qui, après avoir été impliqué dans la conception du fluxmètre gazeux, a su apporter des réponses rapides pour sa modification.

Je remercie Sébastien Huret et Julien Guillou, avec lesquels il a fallu s'organiser en fonction des disponibilités des étalons du laboratoire vide.

Je tiens à remercier tous les collègues du LNE et particulièrement du département Pression-vide que je côtoie tous les jours depuis cinq ans pour leur soutien, leur sympathie, leur disponibilité, et leur aide m'ayant permis de travailler dans d'excellentes conditions.

Pour la motivation qu'elle a su m'apporter ainsi que son soutien, un grand merci à ma mère, que je n'ai pu aller voir souvent en Normandie ces dernières années, ainsi que mes frères et sœurs. Je ne pourrais oublier de remercier mes grands-parents qui, coulant paisiblement leur retraite en Algérie, n'hésitent pas à me rendre visite et m'exprimer leur fierté. Je remercie également mes beaux-parents pour leur soutien.

Je voudrais remercier plus particulièrement ma femme Kamila. Aucun mot ne pourrait suffire pour exprimer tout ce qu'elle m'a apporté.

Liste des abréviations

- *CNAM* : Conservatoire National des Arts et Métiers
- *LNE* : Laboratoire National de Métrologie et d'Essais
- *INRIM* : Istituto Nazionale di Ricerca Metrologica, Laboratoire national italien de métrologie
- *EMRP* : European Metrology Research Program, Programme de recherche européen pour la métrologie
- *JRP* : Joint Research Project, Projet de recherche conjoint
- *QMS* : Quadrupole Mass Spectrometer, Spectromètre de masse quadripolaire
- *EURAMET* : European Association of National Metrology Institutes, Association européenne des laboratoires nationaux de métrologie
- *CNPT* : Conditions Normales de Pression et de Température
- *CDG* : Capacitance Diaphragm Gauge, Jauge capacitive à diaphragme
- *AFNOR* : Association Française de Normalisation
- *GUM* : Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure
- *CEP* : Centre d'Energétique et des Procédés
- *PAS* : Photo-Acoustique Spectrometer, Spectromètre photo-acoustique
- *VTI* : Vacuum Technology Inc.
- *NIST* : National Institute of Standards and Technology

Table des matières

Résumé	3
Abstract	5
Remerciements	6
Liste des abréviations	8
Introduction	17
1 Contexte et objectifs	20
1.1 Contexte	20
1.2 Objectifs du mémoire	22
2 Les différentes définitions de débits	24
2.1 Les flux gazeux et débits	24
2.2 Relations entre les différentes expressions de flux	26
2.3 Notion de conductance	27
2.4 Notion de régime d'écoulement	28
3 Les étalons de débit du LNE	30
3.1 Flux gazeux référencés au vide	31
3.1.1 Le fluxmètre à volume constant	31

TABLE DES MATIÈRES

3.1.2	Méthode par dilution	34
3.1.3	Le fluxmètre à pression constante	35
3.2	Débits référencés à la pression atmosphérique	37
3.2.1	La méthode gravimétrique	37
3.2.2	Le fluxmètre infrarouge	38
4	Le fluxmètre gazeux à pression constante	41
4.1	Principe de fonctionnement	42
4.1.1	Dispositif expérimental	42
4.1.2	Gammes de mesure théoriques du fluxmètre	46
4.1.3	Modèle mathématique de la mesure de flux	47
4.2	Qualification du fluxmètre	51
4.2.1	Qualification des passages étanches	52
4.2.2	Qualification de l'homogénéité et de la stabilité en température	54
4.2.3	Étude du flux gazeux d'origine thermique	60
4.2.4	Étude de la dérive du manomètre différentiel	61
4.3	Budget d'incertitude	63
4.3.1	Pistons	64
4.3.2	Manomètres	67
4.3.3	Détermination de la température du gaz	67
4.3.4	Incetitude sur la détermination du temps de mesure	70
4.3.5	Incetitude sur le flux gazeux d'origine thermique	70
4.3.6	Incetitude sur le flux gazeux issu des passages étanches	71
4.3.7	Bilan d'incertitudes	71
5	Le fluxmètre infrarouge	73

TABLE DES MATIÈRES

5.1	Principe du fluxmètre infrarouge	74
5.1.1	Le spectromètre photo-acoustique	75
5.1.2	Les volumes	78
5.1.3	Caractéristiques actuelles du fluxmètre infrarouge	79
5.2	Qualification du fluxmètre infrarouge pour le CO ₂	80
5.2.1	Étalonnage du spectromètre photo-acoustique.	80
5.2.2	Détermination du volume d'accumulation.	85
5.3	Budget d'incertitude.	86
5.3.1	Mesure de la température	86
5.3.2	Mesure de la pression	87
5.3.3	Mesure du temps	87
5.3.4	Mesure de la concentration	87
5.3.5	Mesure du volume d'accumulation	88
5.3.6	Mesure du débit de fuite de CO ₂	89
6	Comparaisons des fluxmètres infrarouge et à pression constante	90
6.1	Fuite à réservoir de R-134a	91
6.2	La fuite F	94
6.2.1	Mesure de débits d'hélium	95
6.2.2	Mesure de débits de R-134a	96
6.3	La fuite K	100
6.3.1	Mesure de débits de R-134a	100
6.3.2	Mesure de débits de CO ₂	102
7	Perspectives	105
7.1	Le fluxmètre gazeux à pression constante	105

TABLE DES MATIÈRES

7.2	Le fluxmètre infrarouge	107
7.3	Les comparaisons	108
7.4	Étude de l'écoulement au sein d'une fuite de référence	108
Conclusion		110
Annexes		113
A	Notion sur les fuites de gaz de référence	113
B	Le fluxmètre à pression constante	117
C	Détermination de la température	122
D	La spectroscopie photo-acoustique	123
E	Le Nafion	125
F	Les volumes d'expansion	128
G	Le fluxmètre Infrarouge	130
Bibliographie		133

Liste des tableaux

4.1	Gammes de mesure théoriques du fluxmètre	47
4.2	Homogénéité du bloc aluminium	58
4.3	Homogénéité du corps trois volumes sans système de régulation . . .	59
4.4	Homogénéité du corps trois volumes avec système de régulation . . .	60
4.5	Incertitude sur le diamètre du piston 5 mm	64
4.6	Incertitude sur le diamètre du piston 20 mm	65
4.7	Incertitude sur le déplacement du piston 5 mm	66
4.8	Incertitude sur le déplacement du piston 20 mm	66
4.9	Incertitude sur la température indiquée par la chaîne de mesure . . .	68
4.10	Incertitude sur la détermination de la température du gaz	69
4.11	Bilan d'incertitude du fluxmètre à pression constante	71
5.1	Bilan d'incertitudes du fluxmètre infrarouge	79
5.2	Concentrations en CO ₂ des mélanges gazeux étalons	80
5.3	Résultats de l'étalonnage du spectromètre photo-acoustique	85
5.4	Incertitude du spectromètre photo-acoustique pour la mesure de concentration en CO ₂	88
6.1	Résultats d'étalonnage obtenus avec le fluxmètre gazeux	92
6.2	Résultats d'étalonnage obtenus avec le fluxmètre infrarouge	92

LISTE DES TABLEAUX

6.3	Résultats obtenus à l'aide du fluxmètre infrarouge pour la fuite K alimentée en R-134a	101
6.4	Résultats obtenus à l'aide du fluxmètre gazeux pour la fuite K alimentée en R-134a	101

Table des figures

3.1	Schéma de principe du bâti Δp	32
3.2	Méthode par dilution pour l'étalonnage de fuites hélium	35
3.3	Principe du fluxmètre à pression constante	36
3.4	Banc primaire en débitmétrie des gaz	38
3.5	Le fluxmètre infrarouge	39
4.1	Schéma fonctionnel du fluxmètre à pression constante	43
4.2	Régulation de la différence de pression en dents de scie	46
4.3	Méthode de qualification des passages étanches	53
4.4	Mesure du flux gazeux Q_{pe} issu des passages étanches	54
4.5	Vue du circuit d'eau au sein du corps trois volumes	55
4.6	Détermination de la dérive des sondes de température	56
4.7	Stabilité de l'indication des sondes de températures	59
4.8	Variations temporelles de température à partir des mesures de varia- tions de pression	69
5.1	Schéma fonctionnel du fluxmètre infrarouge	76
5.2	Schéma du spectromètre photo-acoustique Innova	77
5.3	Écarts de concentration du PAS	82
5.4	Système de purge du spectromètre photo-acoustique	83

TABLE DES FIGURES

5.5	Écarts de concentration du spectromètre en fonction du débit de rinçage	84
6.1	Résultats de la comparaison de la fuite à réservoir	93
6.2	Écarts normalisés pour la fuite à réservoir	94
6.3	Résultats de la comparaison pour la fuite F alimentée en hélium	95
6.4	Écarts normalisés pour la fuite F alimentée en hélium	96
6.5	Résultats de la comparaison pour la fuite F alimentée en R-134a	97
6.6	Écarts normalisés pour la fuite F alimentée en R-134a	97
6.7	Débit mesuré par le fluxmètre à pression constante pour l'hélium et le R-134a	99
6.8	Résultats de la comparaison pour la fuite K alimentée en R-134a	102
6.9	Résultats de la comparaison pour la fuite K alimentée en CO ₂	104
7.1	Détermination des flux parasites avant et après la mesure	106
A.1	Représentation générale d'une fuite de référence	113
A.2	Fuite réglable à réservoir VTI	115
A.3	Fuite capillaire réglable Leybold	116
B.1	Vue d'ensemble du fluxmètre gazeux à pression constante	118
B.2	Caisson d'isolation thermique	119
B.3	Photo du corps 3 volumes	120
B.4	Vue Fonctionnelle du corps 3 volumes	121
E.1	Formule chimique du Nafion	126
E.2	Tube Nafion de Permapure	127
G.1	Vue d'ensemble du fluxmètre infrarouge	131
G.2	Vue détaillée du fluxmètre infrarouge	132

Introduction

La détection et la mesure de fuites ou débits sont nécessaires dans de nombreux domaines tels que l'automobile, l'aéronautique ou encore l'industrie des semi-conducteurs, mais peuvent aussi avoir un aspect réglementaire lorsque les gaz concernés sont toxiques ou dangereux pour l'environnement. Ces mesures de débits peuvent être effectuées lorsque le gaz s'écoule vers le vide ou la pression atmosphérique

Dans le domaine du vide, la détection de fuites est capitale pour maintenir ce vide dans une enceinte. Aujourd'hui, les étalons de débits pour ces mesures sont bien caractérisés. En effet, plusieurs méthodes sont utilisées et permettent de mesurer des débits de fuites, principalement d'hélium, compris entre $4 \cdot 10^{-14} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ et $4 \cdot 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ avec une incertitude relative de quelques pour cent. Le Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE) dispose pour cela de deux fluxmètres gazeux respectivement à volume constant et pression constante.

Pour les débits référencés à la pression atmosphérique, le Département *Débitométrie et qualité de l'air* assure la traçabilité sur une gamme comprise entre $0,03 \text{ mg} \cdot \text{s}^{-1}$ et $2200 \text{ mg} \cdot \text{s}^{-1}$. Depuis 2006, le Département *Pression-Vide* du LNE, en collaboration avec l'École des mines de Paris développe le fluxmètre infrarouge qui d'assure la traçabilité de débits sur une gamme de mesure comprise entre 1 et $50 \text{ g} \cdot \text{an}^{-1}$ avec une incertitude de 2 pour cent mais uniquement pour le gaz frigorigène R-143a. Cependant, il n'existe à ce jour aucun étalon pour tout autre type de gaz.

Pour répondre à cette problématique, les laboratoires nationaux de métrologie européens se sont engagés dans un projet de recherche visant notamment à approfondir les connaissances dans le domaine des fuites de gaz, ce qui implique d'améliorer

les étalons de références correspondants.

Les travaux de ce mémoire constituent une étude préliminaire à ce projet et se concentrent sur le développement de nos deux références primaires pour la mesure de faibles débits référencés à la pression atmosphérique.

Le premier chapitre décrit le contexte afin de mettre en évidence les objectifs de ces travaux. Le principal but est d'assurer la traçabilité des mesures de faibles débits référencés la pression atmosphérique pour tout type de gaz.

Dans le second chapitre, un rappel des termes employés dans le domaine de la détection et de la mesure de fuites sera exposé afin de mieux aborder le contenu de ce mémoire. Nous ferons ensuite le point sur les différentes méthodes utilisées par le LNE aussi bien sous vide qu'à la pression atmosphérique.

Le chapitre suivant concerne l'adaptation du fluxmètre à pression constante. Lors de sa caractérisation sous vide, il avait été mis en évidence que les variations de température auraient plus d'influence sur les mesures à la pression atmosphérique par rapport aux mesures référencées au vide et qu'il était nécessaire de mettre en place un système de régulation de température. Un modèle mathématique de la mesure de débits sera établi afin de déterminer les autres paramètres influents. Les moyens mis en œuvre pour limiter leurs effets seront détaillés, puis nous caractériserons ce fluxmètre avant de déterminer l'incertitude associée à la mesure de débit.

Le second fluxmètre à faire l'objet d'une adaptation est le fluxmètre infrarouge qui est théoriquement capable de mesurer tout gaz absorbant dans l'infrarouge tout simplement en l'implémentant de filtres optiques correspond à la longueur d'onde d'absorption du gaz. Celui-ci est pré-équipé d'un filtre permettant la mesure de CO₂. Le fluxmètre infrarouge sera caractérisé pour ce gaz. La gamme de mesure sera définie ainsi que son incertitude associée.

Afin d'effectuer la validation métrologique de ces deux fluxmètres, plusieurs comparaisons seront effectuées à l'aide de fuites de transfert sur toute la gamme de ces fluxmètres avec différents gaz. Elles permettront non seulement de comparer les mesures de nos deux méthodes mais aussi celles du laboratoire national de métro-

INTRODUCTION

logie italien (INRIM) qui utilise un fluxmètre à pression constante et celles d'un constructeur de fuite de référence.

Avant de conclure, nous terminerons par les perspectives qu'offrent cette étude en exposant les voies d'amélioration ainsi que les possibilités de mesure de débits référencés à la pression atmosphérique réalisables par le LNE.

Chapitre 1

Contexte et objectifs

1.1 Contexte

Cette étude s'inscrit dans le cadre des projets européens de recherche dans le domaine de la métrologie : " European Metrology Research Program " ou EMRP. Ce programme a pour but de développer et d'accélérer l'innovation et la compétitivité de l'Europe en acquérant de nouvelles compétences dans le domaine de la mesure et en favorisant sa dissémination en Europe. Le programme investit dans des projets regroupant plusieurs participants, avec en première ligne les laboratoires nationaux de métrologie de toute l'Europe ainsi que d'autres collaborateurs tels que les laboratoires de recherche, les universités, ou encore les industriels. Lancé en 2007, le programme se poursuit jusqu'en 2013. Un appel à des projets visant à répondre à des besoins de mesure dans le domaine de l'environnement ou à répondre aux besoins grandissants des industriels pour améliorer notamment leur compétitivité a été lancé en 2010. Le Joint Research Project (JRP) IND12 est un des projets sélectionnés lors de la première phase dans le domaine Industrie qui par la suite a été soumis et sélectionné en octobre 2010.

L'objectif de ce projet est d'apporter des solutions à des problématiques, relatives à la métrologie, rencontrées lors de procédés industriels exigeant des mesures dans le vide ou l'ultra-vide. En effet, les mesures de vide sont souvent nécessaires, voire indispensables, dans de nombreux processus industriels. En pratique, ces mesures sont faiblement caractérisées avec des lacunes dans la traçabilité des mesures ou

encore avec des incertitudes obtenues trop significatives face aux besoins grandissants des industriels dans le domaine. En effet, si les techniques actuelles ont établi des étalons permettant la mesure de pressions totales comprises entre 10^{-9} et 10^5 Pa de gaz purs dans des conditions stationnaires, les processus industriels requièrent plutôt des systèmes impliquant des mélanges de gaz (nécessité de mesurer des pressions partielles) ou bien des conditions d'utilisation dynamique. Or, il n'existe pas pour l'instant d'étalons permettant de telles mesures. L'objectif de ce projet est donc de mettre en place des méthodes de mesure permettant d'assurer la traçabilité des mesures réalisées lors de process industriels dans le vide en développant des étalons et de nouvelles techniques de mesure.

Une meilleure caractérisation des systèmes industriels du vide nécessite de développer des méthodes pour la mesure de pressions totales et partielles pour tous les constituants de mélanges gazeux, pour la mesure de variations temporelles de pressions totales et partielles ainsi que pour l'étalonnage dans des conditions d'environnement industrielles de spectromètres de masse quadripolaires (QMS) et autres instruments de mesure dans le vide. Pour la plupart des applications dans le vide ou l'ultra-vide, le principal défi est de le maintenir. De ce fait, la détection de fuite et la mesure des débits de fuites sont aussi des éléments essentiels à améliorer pour les industriels. Or la métrologie appliquée à la mesure de très faibles fuites, de l'ordre du gramme par an, voir inférieur, est à ce jour insuffisamment développée, sachant que les techniques existantes sont en majorité des techniques de mesure de fuites d'hélium s'écoulant dans le vide. Le dernier objectif du projet est de mettre en place des techniques et des étalons pour améliorer la mesure de gaz résiduel (mélanges de gaz) dans des systèmes sous vide et la détection de fuite de divers gaz et mélanges de gaz s'échappant de ces systèmes dans l'atmosphère ou s'échappant des systèmes industriels pressurisés. Ce mémoire a pour but d'approfondir nos connaissances sur les fuites s'écoulant vers la pression atmosphérique.

1.2 Objectifs du mémoire

Pour les mesures de débits, le LNE dispose de divers étalons avec un fluxmètre à volume constant offrant la possibilité de mesurer des débits de fuites (hélium, azote, argon, R-134a) sur une gamme de $8 \cdot 10^{-11}$ à $4 \cdot 10^{-6}$ mol \cdot s $^{-1}$ sous vide avec une incertitude de 2%. Un nouveau fluxmètre à pression constante est en cours de caractérisation pour la mesure de débits de fuite d'hélium compris entre $5 \cdot 10^{-12}$ à $5 \cdot 10^{-6}$ mol \cdot s $^{-1}$ sous vide avec une incertitude de l'ordre de 2%. Un fluxmètre infrarouge permet la mesure de débits de fuites frigorigènes (R-134a pour l'instant) de $3 \cdot 10^{-10}$ à $1,5 \cdot 10^{-8}$ mol \cdot s $^{-1}$ référencé à la pression atmosphérique. Avec les moyens actuels, le LNE n'est pas apte à réaliser des mesures de faibles débits s'échappant vers la pression atmosphérique nécessaires au bon déroulement du projet JRP IND12. L'objectif principal de ce mémoire est donc de développer et de caractériser les fluxmètres à pression constante et infrarouge pour un maximum de gaz dans une gamme de mesure comprise entre $3 \cdot 10^{-10}$ et $1 \cdot 10^{-6}$ mol \cdot s $^{-1}$.

Le fluxmètre infrarouge peut techniquement mesurer des débits de CO₂, à condition de le qualifier pour ce gaz, c'est-à-dire d'étalonner le spectromètre pour la détection du CO₂, de caractériser le débit résiduel du banc et de déterminer l'incertitude associée. Une étude sur une éventuelle extension à d'autres gaz devra être menée. Il est néanmoins à noter que seuls les gaz absorbant dans l'infrarouge peuvent être détectés par cette méthode. Des fuites d'hélium ne pourront donc pas être mesurées par cette méthode.

L'autre axe de cette étude concerne le fluxmètre à pression constante pour des mesures de débits référencés à la pression atmosphérique pour tout type de gaz. Cet instrument devra faire l'objet de modifications pour répondre aux problématiques liées à la température. Le domaine de mesure possible doit être défini et l'incertitude caractérisée.

Ces deux étalons feront l'objet de plusieurs comparaisons à l'aide de plusieurs étalons de transfert qui seront des fuites de référence. Les mesures de débits de R-134a avec le fluxmètre infrarouge feront office de références pour valider le fluxmètre à

1.2. OBJECTIFS DU MÉMOIRE

pression constante pour les très faibles débits (inférieurs à $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$). Pour les débits supérieurs, la comparaison EURAMET P911 offre une opportunité avec des mesures effectuées par l'INRIM (laboratoire national de métrologie italien) pour l'hélium et le R-134a. Les deux fluxmètres pourront faire l'objet d'une comparaison pour le CO_2 .

Chapitre 2

Les différentes définitions de débits

La compréhension des termes employés dans ce mémoire nécessite un rappel sur les notions de flux et de débit. En effet, en fonction des domaines d'application, nombreux sont les termes employés pour définir un flux qui correspond toujours à une quantité de gaz s'écoulant à travers une surface par unité de temps. La notion de conductance qui est étroitement liée au débit sera abordée. Le régime d'écoulement d'un gaz est aussi important à définir par le fait que celui-ci dépend de différents paramètres tels que la température, les pressions amont et aval ainsi que des dimensions de la canalisation.

2.1 Les flux gazeux et débits

Flux gazeux à pression-volume unitaire Q

Le flux gazeux Q représente la variation d'énergie pV du gaz considéré pendant un temps dt . Cette définition est valable dans l'hypothèse où la température T reste constante pendant le temps dt . Pour une température T donnée, le flux gazeux Q est alors donné par :

$$Q = \frac{d(pV)}{dt}, \quad (2.1)$$

son unité dans le système international (S.I.) est le $\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

Il en découle que le flux gazeux peut être déterminé par la mesure des variations

2.1. LES FLUX GAZEUX ET DÉBITS

de pressions et de volume au cours du temps pour une température constante.

Flux gazeux molaire Q_m

Il est aussi commode de parler du flux gazeux molaire Q_m qui est défini par le nombre de moles de gaz dn traversant une section pendant le temps dt . Ce flux est donné par la relation :

$$Q_m = \frac{dn}{dt}, \quad (2.2)$$

et son unité S.I. est le $\text{mol} \cdot \text{s}^{-1}$.

Il est à noter que l'utilisation du flux gazeux molaire présente l'avantage de ne pas considérer les éventuelles variations de température du gaz.

Débit massique Q_g

Pour les mesures gravimétriques, on se sert souvent du débit massique Q_m qui correspond à la variation de masse de gaz à travers une section pendant un temps dt :

$$Q_g = \frac{dm}{dt}, \quad (2.3)$$

il s'exprime en $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$.

Débit volumique Q_v

La notion de le débit volumique Q_v définit l'écoulement d'un volume de gaz dV à travers une section pendant un temps dt , pour une température T et une pression p données :

$$Q_v = \frac{dV}{dt}, \quad (2.4)$$

il s'exprime en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

Cependant, pour le débit volumique, l'expression la plus utilisée est Q_{vn} , où n caractérise les conditions normales de température et de pression (CNPT) :

$$Q_{vn} = \left. \frac{dV}{dt} \right|_{p_n T_n}, \quad (2.5)$$

avec $T_n = 273,15$ K et $p_n = 101325$ Pa.

2.2 Relations entre les différentes expressions de flux

Au cours de cette étude, nous serons amené à utiliser plusieurs de ces termes. Les relations suivantes nous permettent de passer aisément de l'un à l'autre.

Relation entre Q et Q_m

La relation entre le flux gazeux à pression volume unitaire Q et le flux gazeux molaire Q_m se déduit de la loi des gaz parfaits. Dans des conditions isothermes, nous avons donc :

$$\frac{d(pV)}{dt} = RT \cdot \frac{dN}{dt}. \quad (2.6)$$

Soit :

$$Q_m = \frac{Q}{RT}, \quad (2.7)$$

où T est la température absolue et $R = 8,314\,472$ J · K⁻¹ · mol⁻¹ la constante molaire des gaz parfaits [1].

Relation entre Q_m et Q_g

La relation entre le flux gazeux molaire Q_m et le débit massique Q_g est donnée par :

$$Q_m = \frac{Q_g}{M}, \quad (2.8)$$

où M est la masse molaire du gaz considéré.

Relation entre Q_m et Q_{vn}

La relation entre Q_m et Q_{vn} se déduit également de la loi des gaz parfaits. En effet, puisque

$$V = \frac{1}{p} NRT, \quad (2.9)$$

nous en déduisons que :

$$Q_v = \frac{1}{p} \cdot Q_m \cdot RT, \quad (2.10)$$

soit dans les conditions normales (CNPT) :

$$Q_{vn} = \frac{1}{p_n} \cdot Q_m \cdot RT_n. \quad (2.11)$$

Finalement, nous avons :

$$Q_{vn} = Q_v \cdot \frac{p}{p_n} \cdot \frac{T_n}{T}. \quad (2.12)$$

2.3 Notion de conductance

Il existe une analogie entre le flux gazeux à pression-volume unitaire, exprimé en $\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, et l'intensité électrique [2]. En effet, si l'intensité d'un courant électrique est proportionnelle au nombre d'électrons traversant une section au cours du temps, le flux gazeux est, quant à lui, proportionnel au nombre de molécules franchissant une section au cours du temps. Nous pouvons considérer qu'un circuit de pression est analogue à un circuit électrique et que le flux gazeux est analogue à une intensité. Il est intéressant de définir une grandeur caractérisant le freinage des molécules dans une canalisation. Cette grandeur, analogue à une impédance Z (résistance) correspond au rapport de la chute de pression, équivalent à une différence de potentiel, et du flux gazeux. Nous avons donc :

$$Z = \frac{P_1 - P_2}{Q} \quad (2.13)$$

avec P_1 la pression en amont et P_2 la pression en aval de la canalisation. En introduisant la notion de conductance qui fut présentée en 1949 par Dushman [3], nous avons :

$$C = \frac{1}{Z} = \frac{Q}{P_1 - P_2}. \quad (2.14)$$

Dans le domaine des débits, la conductance C est le plus souvent exprimée en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

2.4 Notion de régime d'écoulement

Les flux gazeux sont caractérisés par le régime d'écoulement du gaz et par le nombre de molécules franchissant une section donnée. Le régime du gaz ainsi que son débit sont déterminés par l'examen de deux paramètres que sont le nombre de Knudsen (K_N) et le nombre de Reynolds (\Re). Afin d'examiner ces nombres caractéristiques, il est indispensable de définir au préalable le libre parcours moyen λ d'une molécule.

La distance que parcourt une molécule entre deux chocs successifs est très variable. En 1857, Clausius introduit cette notion de libre parcours moyen λ qui correspond à la moyenne de ces distances [4]. En supposant les molécules sphériques et élastiques, nous avons :

$$\lambda = \frac{k \cdot T}{\sqrt{2} \cdot \pi \cdot P \cdot \delta^2}, \quad (2.15)$$

avec $k = 1,380\,650\,3 \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ la constante de Boltzmann, T la température absolue, p la pression et δ le diamètre moyen des molécules¹.

Le régime d'écoulement d'un gaz est caractérisé par le nombre de Knudsen K_N . Ce nombre, sans dimension, est le rapport du libre parcours moyen λ au diamètre d de la canalisation :

$$K_N = \frac{\lambda}{d}. \quad (2.16)$$

Selon la valeur de ce nombre, le régime d'écoulement est classé en trois catégories. Le régime moléculaire, qui concerne les très basses pressions, est caractérisé par un K_N supérieur à 1. Dans ce cas, le libre parcours moyen est plus grand que le diamètre de la canalisation et le débit dépend uniquement des collisions entre les molécules et les parois. De ce fait, le débit ne dépend plus la viscosité du gaz [6].

Si le K_N est compris entre 1 et 0,01, le régime est dit transitoire et il y existe aussi bien des collisions entre molécules et contre les parois de la canalisation. Dans cette zone de transition, les conditions d'écoulement sont mal définies[7].

1. Dans la littérature nous avons aussi le terme σ qui est la section efficace de collision [5] et correspond au produit $\pi\delta^2$.

2.4. NOTION DE RÉGIME D'ÉCOULEMENT

Pour un K_N inférieur à 0,01, le régime est dit visqueux et seuls les chocs entre molécules sont considérés pour définir le caractère du débit gazeux.

Le type d'écoulement qui peut être turbulent ou laminaire est déterminé par la valeur du nombre de Reynolds \Re_e . Dans le cas d'une canalisation cylindrique, Ce paramètre, sans dimension, est donné par :

$$\Re_e = \frac{U \cdot \rho \cdot d}{\eta}, \quad (2.17)$$

où ρ est la densité du gaz de viscosité η , s'écoulant avec une vitesse U dans une canalisation de diamètre d . Pour une valeur de \Re_e supérieur à 2200, le débit est toujours turbulent et se traduit par un écoulement de nature chaotique comparable aux turbulences de l'air après le passage d'un véhicule. Lorsque \Re_e est inférieur à 1200, le débit est laminaire. Entre les deux, le débit est laminaire ou turbulent selon les caractéristiques géométriques des orifices d'entrée et de sortie ainsi que celles des parois.

Chapitre 3

Les étalons de débit du LNE

En tant que laboratoire de référence, le LNE est chargé du raccordement des faibles et moyens débits. Ceux-ci peuvent être répartis en deux catégories selon que l'écoulement soit référencé au vide ou à la pression atmosphérique, avec une étendue de mesure qui s'étend sur plus de douze décades.

La mesure des faibles flux gazeux, pouvant descendre jusqu'à $4 \cdot 10^{-16}$ mol.s⁻¹, concernent principalement les laboratoires spécialisés dans la mesure des basses pressions absolues. Les fuites d'hélium occupent une grande partie de cette activité. Ces très faibles flux ne peuvent être mesurés que si l'écoulement du gaz s'effectue vers une très basse pression. Pour la mesure de ces débits, le département *Pression-vide* du LNE, dispose de deux fluxmètres, l'un à pression constante et l'autre à volume constant. Nous constatons que, depuis quelques années, les besoins dans le domaine des fuites et débits se sont élargis aux gaz s'écoulant vers la pression atmosphérique, avec notamment des fuites d'hélium, d'hydrogène, de dioxyde de carbone où encore de gaz frigorigènes à base de fréon. À ce titre, le LNE et l'École des Mines de Paris ont développé depuis 2006 un étalon de débit de fuite frigorigène avec une limite basse de détection de 1 g.an⁻¹ (environ $3 \cdot 10^{-10}$ mol.s⁻¹) [8]. Cette référence a été conçue pour l'étalonnage des fuites de R-134a de référence qui doivent être utilisées pour la qualification des détecteurs de fuites frigorigènes suivant la norme européenne NF EN 14624 [9].

En ce qui concerne les débits supérieurs à $8 \cdot 10^{-7}$ mol.s⁻¹, le raccordement

s'effectue au sein du Département *Débitmétrie gazeuse et qualité de l'air*. Dans ce chapitre, nous décrivons les différents moyens dont dispose le LNE afin d'assurer le raccordement des fuites et débits.

3.1 Flux gazeux référencés au vide

Pour les débits référencés au vide, le LNE dispose d'un étalon primaire qui est le fluxmètre à volume constant avec plusieurs méthodes de mesure qui permettent de couvrir une large gamme de mesure. En plus de cet étalon, un fluxmètre à pression constante est en cours de caractérisation [10].

3.1.1 Le fluxmètre à volume constant

Le dispositif, représenté par la figure 3.1, est composé d'un système de génération de flux relié à un volume V_t en pompage permanent dont la pression est mesurée par un manomètre de pression absolue. À la fermeture de la vanne entre le volume et la pompe, les molécules de gaz s'écoulant de la fuite vers le volume engendrent une augmentation de la pression dp au sein de ce volume. En mesurant cette augmentation de pression pendant un temps dt et à une température T constante, on détermine le flux gazeux à l'aide de l'équation 2.1 :

$$Q(T) = V_t \cdot \frac{dp}{dt}. \quad (3.1)$$

Le fluxmètre à volume constant du LNE baptisé bâti ΔP (figure 3.1) constitue la référence primaire et couvre le domaine compris entre $2 \cdot 10^{-7} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ et $1 \cdot 10^{-2} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ($8 \cdot 10^{-11} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ à $4 \cdot 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$) [11].

Afin de tenir compte du volume mort du système, du dégazage des parois et d'une éventuelle fuite résiduelle, la détermination du flux gazeux engendré par la fuite s'effectue en trois étapes.

3.1. FLUX GAZEUX RÉFÉRENCÉS AU VIDE

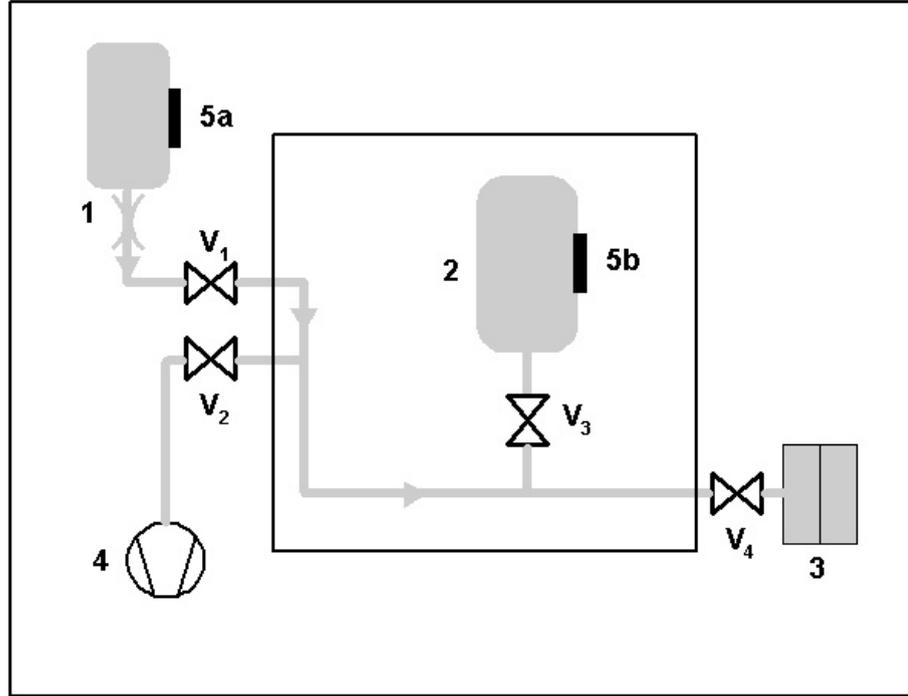


FIGURE 3.1 – Schéma de principe du bâti Δp

(1) Fuite sous test ; (2) Volume étalon de 300 cm^3 ; (3) Manomètre capacitif d'étendue de mesure $0,1 \text{ Pa}$ à 100 Pa ou 1 kPa à 10 kPa suivant le flux à mesurer ; (4) Pompe à palettes ; (5a et 5b) Thermomètres à résistance de platine ; (V1 à V4) Vannes à soufflet.

Il est indispensable de tenir compte de tous les volumes du système. C'est ainsi que, dans notre dispositif, le volume total V_t est composé du volume étalon V_{et} et du volume mort des tubes de liaison V_m :

$$V_t = V_{et} + V_m. \quad (3.2)$$

La première étape consiste à mesurer la remontée en pression ΔP_1 , due à la fuite, dans le volume total V_t pendant le temps Δt_1 et un flux gazeux Q_1 est ainsi déterminé :

$$Q_1 = \frac{\Delta P_1}{\Delta t_1} \cdot V_t. \quad (3.3)$$

La seconde étape permet de mesurer la remontée en pression ΔP_2 , due à la fuite, mais seulement dans le volume mort V_m pendant un temps Δt_2 , le flux gazeux Q_2 est alors :

$$Q_2 = \frac{\Delta P_2}{\Delta t_2} \cdot V_m. \quad (3.4)$$

3.1. FLUX GAZEUX RÉFÉRENCÉS AU VIDE

Enfin, pour déterminer la fuite résiduelle Q_3 , nous mesurons la remontée de pression ΔP_3 en l'absence de fuite dans le volume total V_t pendant un temps Δt_3 :

$$Q_3 = \frac{\Delta P_3}{\Delta t_3} \cdot V_t. \quad (3.5)$$

Pour les deux premières étapes, le flux gazeux mesuré est constant : $Q_1 = Q_2$. A l'aide des équations 3.2, 3.3 et 3.4, nous pouvons déterminer le volume mort V_m :

$$V_m = \frac{\frac{\Delta p_1}{\Delta t_1}}{\frac{\Delta p_2}{\Delta t_2} - \frac{\Delta p_1}{\Delta t_1}} \cdot V_{et}. \quad (3.6)$$

On détermine ensuite le flux gazeux Q_{vol} de la fuite dans le volume étalon à la température T_{vol} en ôtant le flux résiduel Q_3 du flux mesuré :

$$Q_{vol} = Q_1 - Q_3. \quad (3.7)$$

En remplaçant dans 3.7 les expressions de Q_1 et Q_3 par les équations 3.3, 3.5 et 3.6, on obtient :

$$Q_{vol} = V_{et} \cdot \left(\frac{\Delta p_1}{\Delta t_1} - \frac{\Delta p_3}{\Delta t_3} \right) \cdot \left(1 + \frac{\frac{\Delta p_1}{\Delta t_1}}{\frac{\Delta p_2}{\Delta t_2} - \frac{\Delta p_1}{\Delta t_1}} \right). \quad (3.8)$$

Le flux gazeux de la fuite Q_{fui} à la température T_{fui} est déduit de la propriété de conservation du flux gazeux molaire :

$$Q_{fui}(T_{fui}) = Q_{vol} \cdot \frac{T_{fui}}{T_{vol}}. \quad (3.9)$$

L'incertitude élargie associée à la détermination du flux gazeux Q avec cette méthode est de 1,1%, à laquelle il faut ajouter un talon de $4 \cdot 10^{-9} \text{ Pa.m}^3.\text{s}^{-1}$ lié au flux gazeux résiduel.

La sensibilité du manomètre mesurant la remontée de pression limite la gamme de mesure à $2 \cdot 10^{-7} \text{ Pa.m}^3.\text{s}^{-1}$. Pour diminuer la gamme basse de ce fluxmètre d'un facteur 10, il faudrait réduire le volume V_0 du même facteur. Une telle modification entraînerait une incertitude relative associée à la mesure de ce volume supérieure à 3% ce qui limiterait l'intérêt de l'élargissement de la gamme de mesure. Pour les débits inférieurs, le LNE a donc mis en œuvre une méthode par dilution.

3.1.2 Méthode par dilution

Pour les gammes de flux plus basses, le LNE utilise une fuite capillaire de référence sans réservoir identifiée Fuite H (Annexe C) pour laquelle le flux gazeux généré est fonction de la pression de gaz appliquée en amont. La méthode par dilution s'effectue en deux étapes (figure 3.2). Dans un premier temps, la méthode par variation de pression à volume constant permet de modéliser le flux gazeux en fonction de la pression amont générée à l'aide d'un contrôleur de pression alimenté en azote pur avec une pression p_{amont} comprise entre 150 kPa et 700 kPa. En aval, une gamme de flux Q_{N_2} comprise entre $4,7 \cdot 10^{-7} \text{ Pa.m}^3.\text{s}^{-1}$ et $1,2 \cdot 10^{-5} \text{ Pa.m}^3.\text{s}^{-1}$ est générée. Une modélisation de la fuite en fonction de la pression en amont est déterminée avec un polynôme de deuxième degré. Dans un second temps, cette fuite est alimentée par un mélange à faible concentration d'hélium C_{He} dans une matrice d'azote. Le flux gazeux en hélium Q_{He} ainsi obtenu est considéré égal à :

$$Q_{He}(p_{amont}) = C_{He} \times Q_{N_2}(p_{amont}). \quad (3.10)$$

Cette méthode consiste, dans un premier temps, à connecter la fuite à étalonner sur un détecteur d'hélium et d'en mesurer le signal de sortie, puis de connecter dans un second temps la fuite H alimentée à l'aide du mélange adéquat. La pression amont p_{amont} est ajustée afin d'obtenir un signal de sortie du détecteur identique à celui produit par la fuite en étalonnage. Dans ce cas, le flux de cette fuite est considéré égal au flux équivalent en hélium Q_{He} de la fuite H. Avec des mélanges de concentration nominale en hélium de 0,01%, 0,1% et 1% combinés aux pressions appliquées en amont de la fuite, il est possible de couvrir la gamme de flux en hélium de $1 \cdot 10^{-10} \text{ Pa.m}^3.\text{s}^{-1}$ à $2 \cdot 10^{-7} \text{ Pa.m}^3.\text{s}^{-1}$ avec une incertitude relative ($k = 2$) de 4% qui est convenable pour cette gamme de mesure.

3.1. FLUX GAZEUX RÉFÉRENCÉS AU VIDE

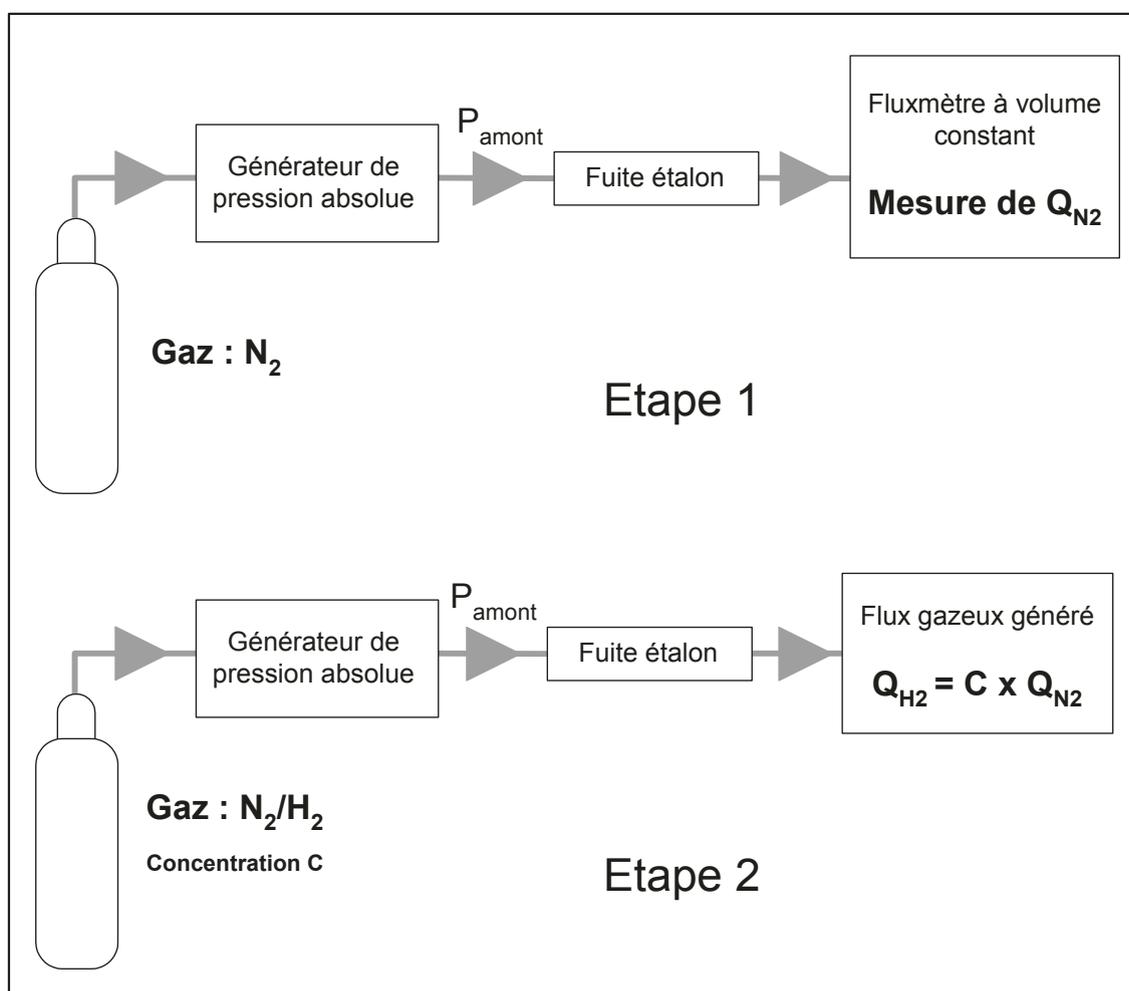


FIGURE 3.2 – Méthode par dilution pour l'étalonnage de fuites hélium

3.1.3 Le fluxmètre à pression constante

Dans le cadre du développement de la méthode de l'expansion continue, il est nécessaire à la fois de générer et de mesurer un flux gazeux injecté dans une enceinte à vide [12]. Or, le fluxmètre à volume constant n'offre pas cette possibilité, ce qui a conduit le LNE à développer un fluxmètre à pression constante. Nous l'aborderons ici de façon très générale avant d'en faire une étude approfondie dans le chapitre 4.

Comme le montre la figure 3.3, le fluxmètre à pression constante est constitué d'un volume de mesure à partir duquel s'échappe ou pénètre un flux gazeux Q . Ce flux a pour conséquence de faire varier la pression p_0 au sein du volume qui,

3.1. FLUX GAZEUX RÉFÉRENCÉS AU VIDE

par définition, doit rester constante. Pour ce faire, un piston se déplace au sein du volume à une vitesse constante au cours du temps de mesure dt ce qui produit une variation dV du volume. Dans l'hypothèse où la température T est constante, le flux mesuré est donné par la relation :

$$Q(T) = p_0 \frac{dV}{dt}, \quad (3.11)$$

où nous avons utilisé l'équation 2.1.

Le fluxmètre à pression constante du LNE couvre la gamme de flux gazeux allant de $1 \cdot 10^{-8} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ à $1 \cdot 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ avec une incertitude relative ($k = 2$) de l'ordre de 2%.

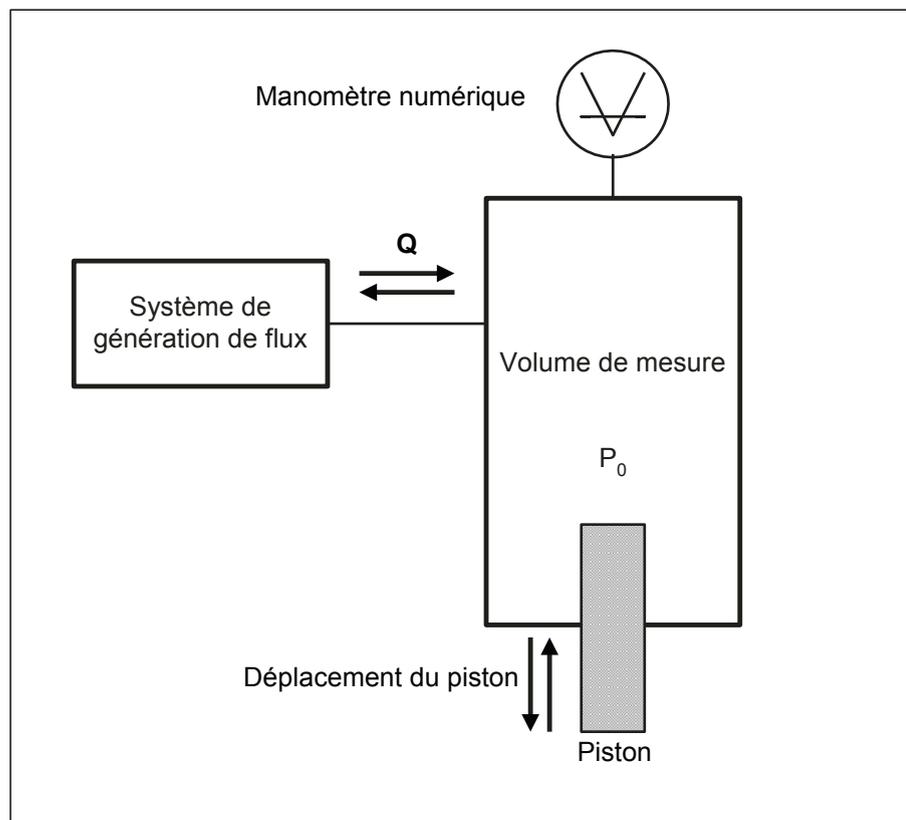


FIGURE 3.3 – Principe du fluxmètre à pression constante

3.2 Débits référencés à la pression atmosphérique

Le département *Débitmétrie gazeuze et qualité de l'air* du LNE effectue les raccordements des débits gazeux référencés à la pression atmosphérique entre $0,03 \text{ mg} \cdot \text{s}^{-1}$ et $2200 \text{ mg} \cdot \text{s}^{-1}$. Mais depuis quelques années, des besoins en mesure de flux encore plus faible sont apparus, notamment dans le domaine de l'environnement. Ainsi, dans le cadre d'une réglementation européenne [9], le département *Pression-Vide* du LNE et l'École des Mines de Paris ont mis au point un banc d'étalonnage de fuites de gaz frigorigène compris entre $3,0 \cdot 10^{-10}$ à $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ (1 à $50 \text{ g} \cdot \text{an}^{-1}$).

3.2.1 La méthode gravimétrique

Dans cette gamme de mesure comprise entre $0,03 \text{ mg} \cdot \text{s}^{-1}$ et $2200 \text{ mg} \cdot \text{s}^{-1}$, le raccordement est réalisé par le département *Qualité de l'air et débitmétrie* du LNE. Pour cela, une méthode primaire de gravimétrie, découlant directement de la définition de l'équation 2.3, est utilisée. Comme le montre la figure 3.4, à partir d'un régulateur de débit massique placé en aval du détendeur de la bouteille de gaz pur, un débit stable est généré et mesuré par le débitmètre à étalonner. Pendant le temps de mesure Δt , la variation de masse de gaz Δm qui s'échappe de la bouteille est mesurée par un comparateur de masse. Connaissant la masse molaire du gaz, on peut ainsi déterminer le débit molaire Q_m . L'incertitude relative élargie ($k = 2$) sur le débit mesuré est comprise entre 0,2% et 0,5%.

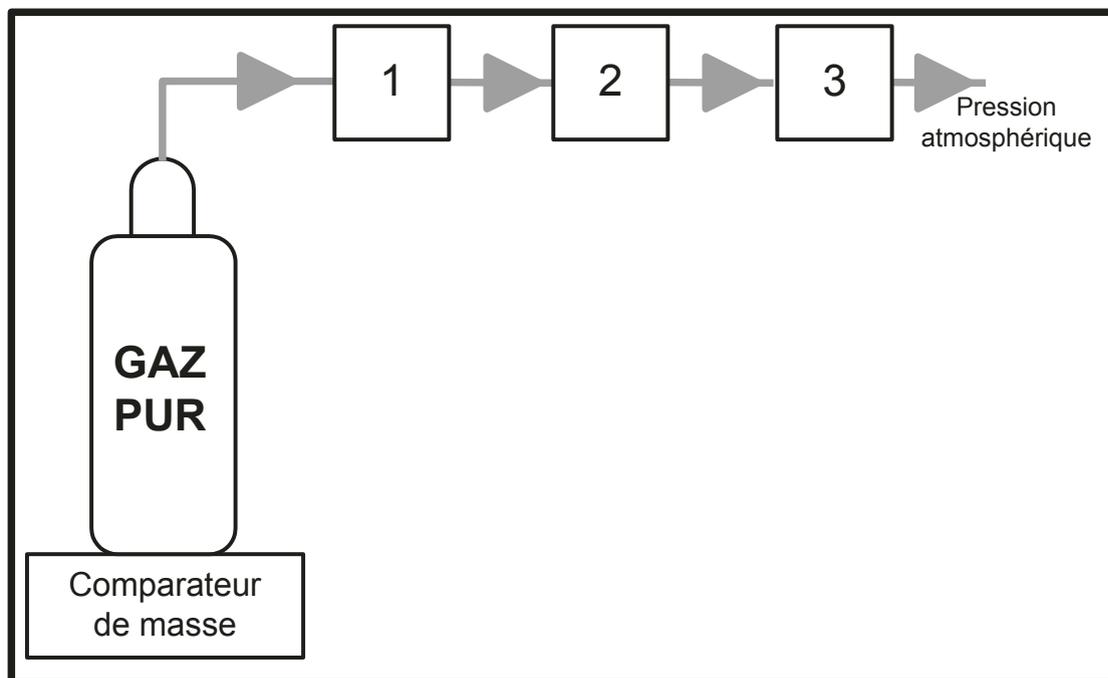


FIGURE 3.4 – Banc primaire en débitmétrie des gaz

(1) Détendeur ; (2) Débitmètre massique à étalonner ; (3) Régulateur de débit massique

3.2.2 Le fluxmètre infrarouge

Suite au protocole de Kyoto imposant la réduction des émissions de gaz à effet de serre, une directive européenne impose le contrôle périodique des équipements contenant plus de 3 kg de gaz frigorigène. Les utilisateurs de ces équipements doivent vérifier leur fuite avec des détecteurs de fuites. En France, l'arrêté du 7 mai 2007 impose de posséder un détecteur de fuite portable dont la limite de détection est inférieure à 5 g/an suivant la norme EN 14624. Pour mettre en oeuvre les essais de la norme, il est nécessaire de posséder des fuites étalonnées de valeurs nominales comprises entre $1 \text{ g}\cdot\text{an}^{-1}$ et $50 \text{ g}\cdot\text{an}^{-1}$. Pour effectuer leurs étalonnages, le LNE et l'École des Mines de Paris ont développé un étalon primaire. La méthode d'étalonnage consiste à mesurer, à l'aide d'un spectromètre photo-acoustique, la variation temporelle de la concentration de gaz émis par la fuite dans un volume d'accumulation fermé (figure 3.5).

3.2. DÉBITS RÉFÉRENCÉS À LA PRESSION ATMOSPHÉRIQUE

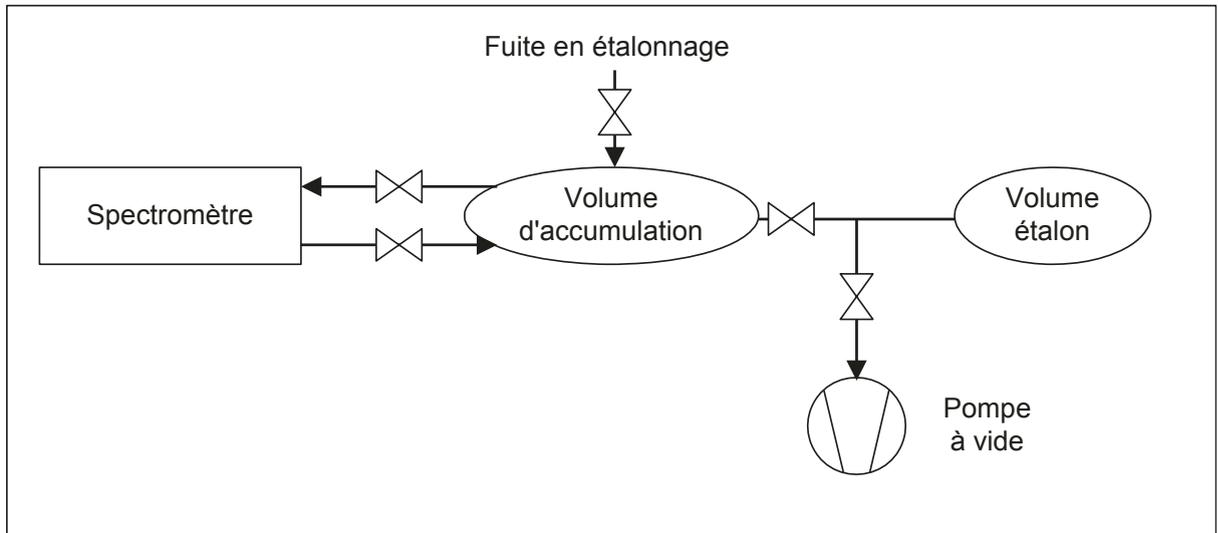


FIGURE 3.5 – Le fluxmètre infrarouge

La fuite est connectée au volume d'accumulation et le spectromètre mesure la variation de concentration de gaz dans ce volume. La pompe permet de rincer le volume d'accumulation pour effectuer une nouvelle mesure.

Cette méthode présente trois intérêts : le gaz traceur est le gaz frigorigène, le principe d'accumulation offre l'avantage d'augmenter la sensibilité avec le temps de mesure et le débit de fuite est mesuré dans les conditions d'utilisation c'est-à-dire à la fois à la pression atmosphérique et à une température voisine de 20 °C.

L'équation 3.12 permet d'obtenir le débit massique Q_g en fonction de la masse molaire M du gaz, de la constante molaire des gaz R , du volume d'accumulation V et de la variation temporelle de la fonction $p.C_{R-134a}/T$ où p , T et C_{R-134a} sont respectivement la pression, la température et la concentration du gaz au sein du volume d'accumulation[8] :

$$Q_g = \frac{M}{R} \cdot V \cdot \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{p \cdot C_{R-134a}}{T} \right). \quad (3.12)$$

L'incertitude de mesure est essentiellement due à la détermination du volume d'accumulation et à l'étalonnage du spectromètre photo-acoustique. Sa valeur élargie ($k = 2$) est de l'ordre de 2 à 4 %.

Le fluxmètre infrarouge offre la possibilité de mesurer le débit de tout type de gaz, à condition que celui-ci absorbe dans l'infrarouge, pour ce faire un filtre optique doit

3.2. DÉBITS RÉFÉRENCÉS À LA PRESSION ATMOSPHERIQUE

être ajouté. Cet instrument en possède déjà un qui permet d'analyser le CO_2 . Dans le chapitre suivant, nous verrons justement la qualification et la caractérisation de ce banc pour la mesure de débit de fuite de CO_2 . Cependant, la méthode d'accumulation limite la gamme supérieure de mesure du fait qu'un certain nombre de mesures soit nécessaire pour atteindre une incertitude acceptable, de l'ordre de quelques pour cent. Afin d'étendre cette gamme de mesure vers le haut, le LNE a choisi le fluxmètre à pression constante. En effet, celui-ci peut mesurer aussi bien des débits référencés à la pression atmosphérique qu'au vide, mais pour cela il est indispensable de minimiser les fluctuations et inhomogénéités de température de cet instrument. Nous verrons donc, dans ce qui suit, les moyens mis en œuvre pour répondre à cette problématique.

Chapitre 4

Le fluxmètre gazeux à pression constante

Le fluxmètre gazeux à pression constante a été conçu pour les besoins relatifs à la mise en œuvre de l'expansion continue. Bien que ces besoins concernent des écoulements référencés au vide, ce fluxmètre est capable de réaliser des mesures de débit de fuite s'écoulant vers la pression atmosphérique. Si le principe de fonctionnement est identique dans les deux cas, les régimes d'écoulement du gaz et la sensibilité aux paramètres extérieurs sont différents. En effet, dans le cas de débits référencés à la pression atmosphérique, l'écoulement se fait toujours en régime visqueux laminaire alors que les débits référencés aux vides peuvent se faire en régime moléculaire, visqueux ou encore transitoire. Le paramètre le plus important entre les deux modes est la sensibilité aux paramètres extérieurs, avec notamment la température ambiante qui est un élément critique pour les mesures à la pression atmosphérique. Afin de pouvoir réaliser ces mesures, il est indispensable de maîtriser la température de l'instrument et ainsi limiter les flux gazeux d'origine thermique. Après avoir détaillé le principe de fonctionnement du fluxmètre, nous présenterons les moyens mis en œuvre pour limiter l'influence de la température ambiante, puis nous caractériserons l'incertitude associée à la mesure du flux gazeux.

4.1 Principe de fonctionnement

4.1.1 Dispositif expérimental

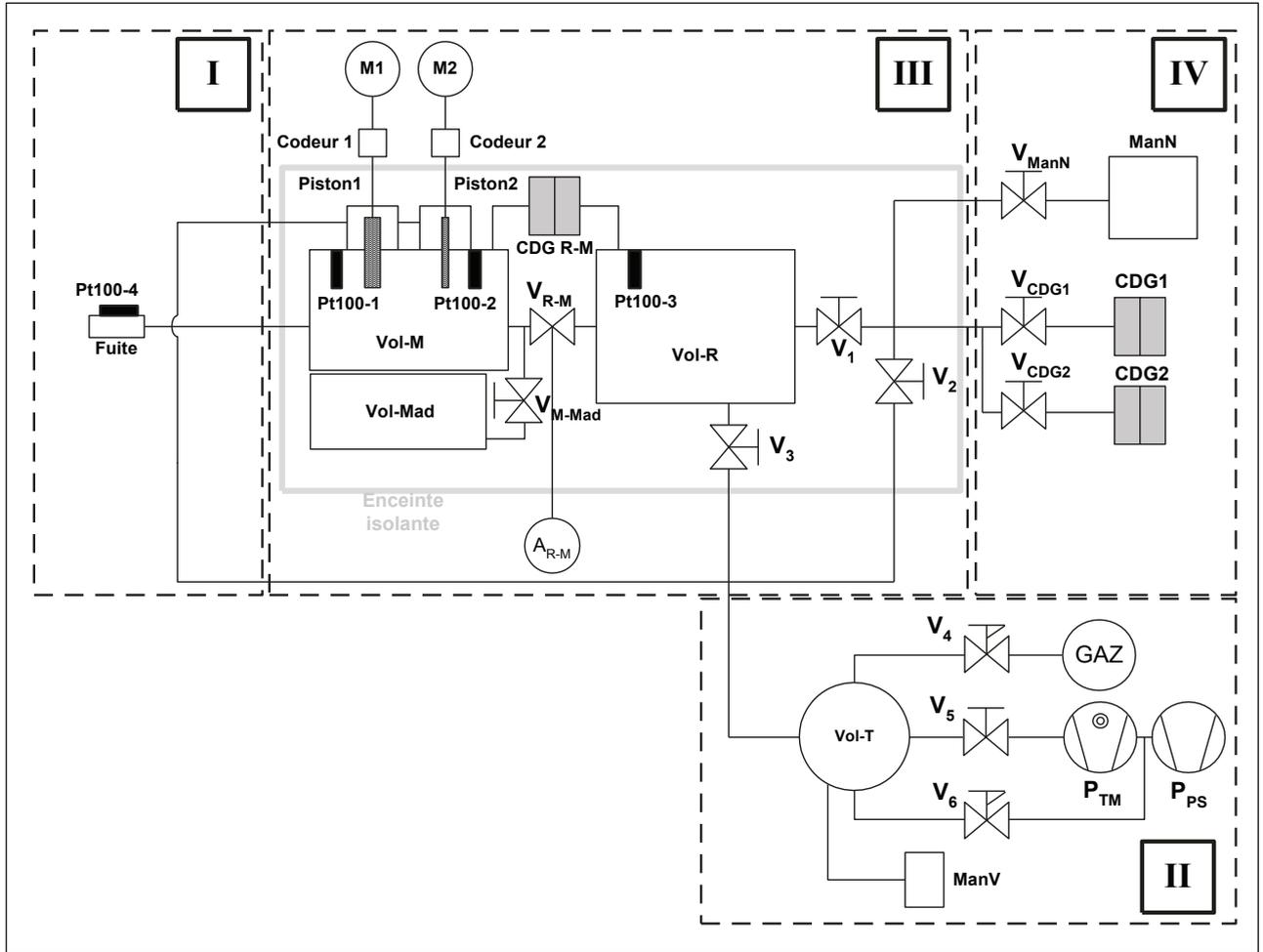
Le débit mesuré par ce fluxmètre est déterminé à partir de la variation de volume nécessaire pour compenser l'augmentation de pression due à l'introduction du gaz et de ce fait maintenir la pression constante dans un volume fermé. Le schéma fonctionnel du fluxmètre gazeux est représenté sur la figure 4.1.

Le dispositif expérimental peut être décomposé en quatre parties. La première correspond à la connexion de la fuite à mesurer, la deuxième est composée du système de rinçage, la troisième est le cœur du dispositif de mesure et enfin la dernière permet de mesurer la pression de référence.

La partie I du schéma correspond à la fuite à mesurer qui est connectée au volume de mesure V_M . Une sonde de température à résistance de platine de type *Pt100* permet de mesurer la température de la fuite en étalonnage dont le coefficient de température peut ne pas être négligeable (Annexe A). La connexion de la fuite sur le fluxmètre requiert quelques précautions. En effet, puisque le fait de manipuler la fuite lors du montage augmente sa température, il est indispensable d'attendre le temps nécessaire pour que la température de celle-ci redevienne stable. De plus, cette stabilisation permet de dissiper les éventuelles accumulations de charge au niveau de la fuite. Au vu de ces deux paramètres, le temps minimum de stabilisation a été fixé à quatre heures.

Le système de rinçage est composé d'une pompe primaire sèche ALCATEL type ACP 28, d'une pompe turbo-moléculaire ADIXEN type ACT 200T, d'un volume tampon, d'un manomètre à vide MKS et d'une entrée de gaz. Lors de la conception du fluxmètre, ces différents éléments ont été choisis dans le but de pouvoir effectuer un rinçage avec un vide résiduel inférieur à 10^{-3} Pa, puis dans un deuxième temps appliquer une pression de travail dans les volumes à l'aide de la vanne de micro-fuite via le volume tampon. Pour les mesures référencées à la pression atmosphérique, l'utilisation de la pompe sèche suffit au rinçage.

4.1. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT



Avec l'aimable autorisation de F. BOINEAU[10]

FIGURE 4.1 – Schéma fonctionnel du fluxmètre à pression constante

- (I) Fuite en étalonnage; ($Pt100 - 4$) : sonde de température associée à la fuite;
- (II) ($Vol - T$) : volume tampon; (P_{PS}) : pompe primaire sèche; (P_{TM}) : pompe turbomoléculaire; (V_4) : vanne de micro-fuite de dosage; (V_5) : vanne à tiroir; (V_6) : vanne à diaphragme; ($ManV$) : jauge à vide Pirani-Penning.
- (III) Pilotage et mesure de la variation de volume; ($CDGR - M$) : manomètre capacitif différentiel d'étendue 100 Pa; ($Vol - R$) : volume de référence; ($Vol - M$) : volume de mesure; ($Vol - Mad$) : volume additionnel au volume de mesure; ($Piston1$) : piston \varnothing 20 mm; ($Piston2$) : piston \varnothing 5 mm; ($M1$ et $M2$) : moteurs pas à pas de pilotage en vitesse des pistons 1 et 2; ($Codeurs 1$ et 2) codeurs angulaires absolus associés à la mesure du déplacement des pistons 1 et 2; ($Pt100 - 1$ à 3) : sondes de température; (V_1 à V_3) : vannes à soufflet pneumatiques; (V_{R-M}) : vanne à soufflet d'isolement entre $Vol - M$ et $Vol - R$; (A_{R-M}) : actionneur pneumatique rotatif associé à la vanne V_{R-M} ; (V_{M-Mad}) : vanne à soufflet permettant d'associer le volume additionnel au volume de mesure.
- (IV) mesure de la pression de référence; ($CDG1$) : manomètre capacitif absolu d'étendue 100Pa; ($CDG2$) : manomètre capacitif absolu d'étendue 10kPa; ($ManN$) : manomètre absolu d'étendue 130kPa.

4.1. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT

La Partie III du fluxmètre est constituée d'un volume de référence et d'un volume de mesure. Ce dernier à une capacité d'environ 46 cm^3 ce qui permet, étant donnée la résolution de 1 mPa du manomètre de pression différentielle CDGR-M, de couvrir une gamme de mesure de fuite allant de $1 \cdot 10^{-6} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ à $5 \cdot 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Pour des débits plus importants et jusqu'à $2 \cdot 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, un volume additionnel est connecté au volume de mesure pour augmenter la capacité totale à 164 cm^3 . Les températures des deux volumes sont mesurées à l'aide des sondes de type *Pt100*.

La pression P_{ref} au niveau du volume de référence est mesurée à l'aide du manomètre numérique résonant ManN de marque DRUCK DPI142. Un capteur capacitif de pression différentielle MKS de gamme 130 Pa est placé entre les deux volumes et permet de mesurer les variations de pression dues aux molécules débitées dans le volume de mesure par rapport au volume de référence.

Lors d'une mesure, la fuite de flux gazeux Q augmente la pression dans le volume de mesure. Le signal Δp augmente donc et un automate agit sur le déplacement du piston de sorte à établir une vitesse constante et annuler la différence de pression Δp . Le flux équivalent Q_{pist} généré par le piston est égale à l'inverse du flux à mesurer soit $Q_{pist} = -Q$ [10][13]. Le piston est actionné à l'aide d'un moteur avec une vitesse v . Ce flux est alors donné par :

$$Q_{pist} = S \cdot v \cdot p_0, \quad (4.1)$$

avec S la surface du piston et p_0 la pression de référence.

Cependant, cette approche reste difficilement réalisable car elle consiste en quelque sorte à un asservissement. Jousten *et al.* [13] ont montré une autre approche qui consiste à laisser varier le signal de sortie Δp en dents de scie entre deux seuils Δp_{min} et Δp_{max} symétriques. Ces seuils sont définis au préalable avec comme conditions d'être compris entre -100 Pa et 100 Pa et permettre une course de piston suffisante. Lorsque les deux volumes sont isolés, la fuite génère un flux qui pour effet d'augmenter la pression au sein du volume de mesure, la valeur de Δp augmente alors jusqu'au seuil Δp_{max} . Un automate actionne le piston avec une vitesse

4.1. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT

constante suffisante pour que le signal Δp décroît jusqu'au seuil Δp_{min} . Le piston est alors arrêté et le signal Δp croit à nouveau. Cette action est répétée jusqu'à avoir un déplacement $(x_2 - x_1)$ du piston suffisant. La vitesse du piston est choisie pour que le flux généré par son déplacement soit k_0 fois supérieur à Q_{fui} :

$$Q_{pist} = -k_0 \times Q_{fui}. \quad (4.2)$$

Lorsque le piston est immobile, nous avons un flux observé Q_{obs} donnée par :

$$(Q_{obs})_{pist-immob} = Q_{fui}. \quad (4.3)$$

Lors des phases où le piston est actionné nous avons :

$$(Q_{obs})_{pist-mob} = Q_{fui} + Q_{pist}, \quad (4.4)$$

soit :

$$(Q_{obs})_{pist-mob} = Q_{fui} \times (1 - k_0). \quad (4.5)$$

Comme le montre la figure 4.2, les instants t_1 et t_2 , où le signal Δp est nul, sont reportés sur l'enregistrement du déplacement du piston. Sur cet intervalle, la pression est en moyenne égale à p_0 . Pour une température constante, le flux gazeux mesuré est alors donné par la relation :

$$Q = p_0 \cdot S \cdot \left(\frac{x_2 - x_1}{t_2 - t_1} \right). \quad (4.6)$$

Cette relation est un modèle simplifié de l'expression du flux mesuré. Nous étudierons au paragraphe 4.1.3 un modèle mathématique plus réaliste afin d'identifier les paramètres influents et d'en limiter les effets sur la mesure dans le but de diminuer leur contribution respective dans le bilan d'incertitude.

4.1. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT

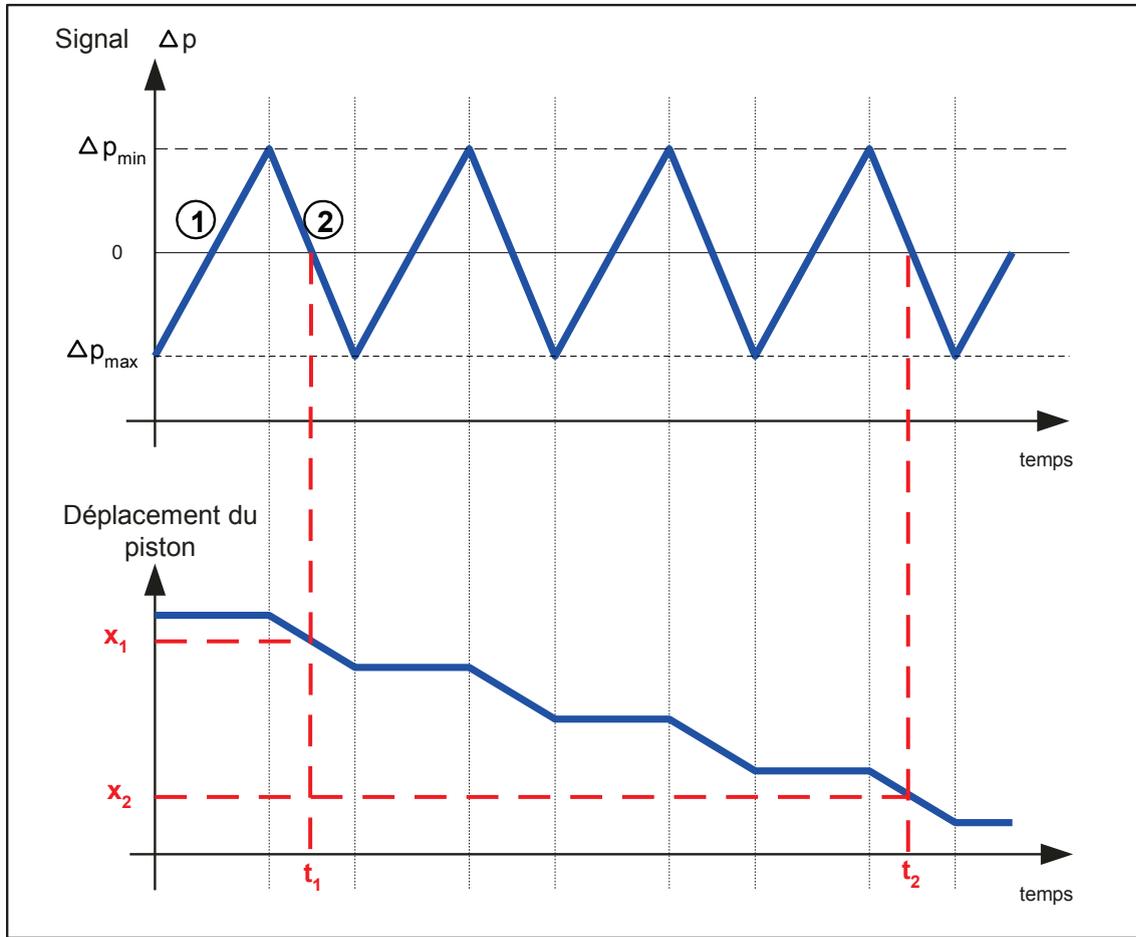


FIGURE 4.2 – Régulation de la différence de pression en dents de scie

Sur ce graphique, la différence de pression Δp et la position du piston sont représentées sur une même échelle de temps. En phase 1, la fuite débite dans le volume de mesure, le signal Δp augmente jusqu'à la valeur Δp_{min} . En phase 2, l'automate enclenche le déplacement du piston à une vitesse constante ; le volume de mesure augmente et sa pression diminue jusqu'à atteindre le seuil Δp_{min} . Ces deux phases sont répétées de façon à avoir une course de piston comprise entre 10 et 20 mm. Le temps t_1 correspond au premier passage du signal Δp à 0 pour la phase 2, la position du piston à cet instant est notée x_1 . Le temps t_2 correspond au dernier passage du signal Δp à 0 pour la même phase, la position du piston à cet instant est notée x_2 .

4.1.2 Gammes de mesure théoriques du fluxmètre

Compte tenu de la configuration du fluxmètre, il est possible d'en définir la gamme de mesure. En effet, à partir des valeurs de v_{pist} , de la surface S du piston et du facteur k_0 , nous pouvons déterminer le flux théorique Q_{theor} pour une pression p_0 donnée à l'aide des équations 4.1 et 4.2 :

$$Q_{theor} = \frac{p_0}{k_0} \cdot S \cdot v_{pist}. \quad (4.7)$$

Les limites théoriques de flux mesurables pour chacun des deux pistons peuvent être calculées en fonction de la plage de vitesse de pilotage des pistons comprises entre 2 et 100 $\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ et du facteur k_0 compris entre 1,5 et 4,0. La limite basse Q_{min} est définie pour la vitesse minimale et pour $k_0 = 4,0$, alors que la limite haute est définie avec une vitesse 100 $\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ et un facteur de 1,5. La configuration idéale est donnée pour $k_0 = 2,0$, ce critère sera appliqué pour limiter la zone de regroupement des deux pistons. Le tableau 4.1 donne les extremas de ces flux théoriques pour les deux pistons.

TABLE 4.1 – Gammes de mesure théoriques du fluxmètre

	Q_{min} ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	Q_{max} ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)
Piston 5	$9,9 \cdot 10^{-7}$	$9,9 \cdot 10^{-5}$
Piston 20	$3,1 \cdot 10^{-5}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$

4.1.3 Modèle mathématique de la mesure de flux

Avant d'opter pour un modèle mathématique simple, il est important de commencer avec un modèle un peu plus complexe dans le but de comprendre les différents phénomènes physiques entrant en jeu lors d'une mesure. Notons dans un premier temps dN_{Fui}/dt le nombre de molécules issues de la fuite allant vers le système de mesure par unité de temps. La variation temporelle du nombre de molécules dN_{Vm}/dt dans le volume V_m est donnée par [13] :

$$\frac{dN_{Vm}}{dt} = \frac{dN_{Fui}}{dt} - \left(\frac{dN_{abs}}{dt} + \frac{dN_{perte}}{dt} \right) \quad (4.8)$$

où dN_{abs} représente les molécules issues de la fuite et absorbées par les différents matériaux du système et dN_{perte} les molécules s'échappant du volume de mesure notamment par les passages étanches des pistons. Les effets d'absorption et de désorption peuvent être négligés dans notre cas. La différence de pression Δp entre le volume de mesure V_m et le volume de référence V_{ref} est :

$$\Delta p = p_m - p_{ref}. \quad (4.9)$$

Nous avons vu précédemment qu'entre les instants t_1 et t_2 cette différence de pression est identique alors que le déplacement du piston a engendré une augmentation du volume de mesure :

$$\frac{\Delta p}{\Delta t} = 0 \text{ avec } \Delta t = t_2 - t_1, \quad (4.10)$$

ou encore :

$$\frac{\Delta p_m}{\Delta t} = \frac{\Delta p_{ref}}{\Delta t}. \quad (4.11)$$

En considérant que la variation de concentration du gaz considéré dans le volume de mesure est très petite, nous pouvons appliquer la relation des gaz parfaits dans chaque volume. Au niveau du volume de référence, nous avons :

$$\frac{\Delta p_{ref}}{\Delta t} = \frac{N_{ref} \cdot k}{V_{ref}} \cdot \frac{\Delta T_{ref}}{\Delta t} \quad (4.12)$$

avec k la constante de Boltzmann.

Dans l'hypothèse où il y absence de fuite et que les changements de volume dus à la température sont négligeables, nous avons N_{ref} et V_{ref} constants :

$$\frac{\Delta p_{ref}}{\Delta t} = \frac{p_{ref}}{T_{ref}} \cdot \frac{\Delta T_{ref}}{\Delta t}. \quad (4.13)$$

Au sein du volume de mesure, les phénomènes physiques en jeu sont plus importants. À l'instant t_1 nous avons :

$$p_m(t_1) = N_m(t_1) \cdot k \cdot \frac{T_m(t_1)}{V_m(t_1)}, \quad (4.14)$$

et à l'instant t_2 :

$$p_m(t_2) = \left[N_m(t_1) + \Delta t \frac{dN_m}{dt} \right] \cdot k \cdot \frac{T_m(t_2)}{V_m(t_2)}. \quad (4.15)$$

Les variations de température et de volume entre les instants t_1 et t_2 sont données par :

$$T_m(t_2) = T_m(t_1) + \Delta T_m \quad (4.16)$$

$$V_m(t_2) = V_m(t_1) + \Delta V_m \quad (4.17)$$

En combinant les équations 4.14 à 4.17, nous avons :

$$\frac{\Delta p_m}{\Delta t} = \frac{p_m(t_2) - p_m(t_1)}{\Delta t} \quad (4.18)$$

$$\begin{aligned} \frac{\Delta p_m}{\Delta t} = & -\frac{N_m(t_1) \cdot \frac{\Delta V_m}{V_m(t_1)} \cdot k \cdot T_m(t_1)}{V_m(t_1) \Delta t} + \frac{\frac{dN_m}{dt} \cdot k \cdot T_m(t_1)}{V_m(t_1)} \cdot \left(1 - \frac{\Delta V_m}{V_m(t_1)}\right) \\ & + \frac{[N_m(t_1) + \Delta t \cdot \frac{dN_m}{dt}] \cdot k \cdot \Delta T_m}{V_m(t_1) \Delta t} \cdot \left(1 - \frac{\Delta V_m}{V_m(t_1)}\right) \end{aligned} \quad (4.19)$$

puis à l'aide des équations 4.19, 4.13, 4.11 et 4.8 ainsi que les approximations $\frac{\Delta V_m}{V_m}$ et $\frac{\Delta T_m}{T_m} \ll 1$, nous avons finalement :

$$\frac{dN_{Fui}}{dt} = \frac{dN_{abs}}{dt} + \frac{dN_{perte}}{dt} + \frac{p_m(t_1) \cdot \frac{\Delta V_m}{\Delta t}}{k \cdot T_m(t_1)} + \frac{V_m(t_1) \cdot \frac{p_{ref}}{T_{ref}} \cdot \frac{\Delta T_{ref}}{\Delta t}}{k \cdot T_m(t_1)} - \frac{N_m(t_1) \cdot \frac{\Delta T_m}{\Delta t}}{T_m(t_1)}. \quad (4.20)$$

Le premier terme de cette relation correspond à l'absorption, le deuxième aux fuites dans le système de mesure, le troisième fait intervenir la variation de volume nécessaire pour maintenir la différence de pression nulle et correspond au signal de mesure, le quatrième et le cinquième terme sont liés respectivement aux variations de pression dues aux variations de température au sein du volume de référence et du volume de mesure. Les deux premiers ainsi que les deux derniers termes sont les effets indésirables du système de mesure. Si les effets d'absorption sont négligeables, il est par contre nécessaire de caractériser les fuites au niveau des passages étanches qui présentent un risque. Nous constatons que l'influence de la température est proportionnelle à la pression de référence, ce qui implique une meilleure maîtrise de

4.1. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT

celles-ci pour des mesures de débit de fuite à la pression atmosphérique. Ces deux paramètres seront étudiés par la suite et nous verrons les solutions apportées afin de limiter l'influence de la température.

En considérant uniquement le terme lié à la variation de volume nécessaire au maintien d'une différence de pression nulle, nous avons :

$$\frac{dN_{Fui}}{dt} = \frac{p_m(t_1) \cdot \frac{\Delta V_m}{\Delta t}}{k \cdot T_m(t_1)}. \quad (4.21)$$

Soit en débit molaire :

$$Q_{Fui} = \frac{p_m(t_1)}{RT_m} \cdot \frac{\Delta V_m}{\Delta t}. \quad (4.22)$$

Dans la pratique, la fermeture de la vanne V_{R-M} entraîne une différence de pression entre les deux volumes, nous avons donc $p_m(t_1) \neq p_{ref}$. Étant donné que seule la pression de référence est mesurée, cette différence que nous noterons Δp_{ini} doit être prise en compte pour obtenir la pression du volume de mesure :

$$p_m = p_{ref} + \Delta p_{ini}. \quad (4.23)$$

À cela, il faut également ajouter l'effet d'une éventuelle dérive du capteur mesurant le signal Δp au cours du temps de mesure. Ce paramètre sera également étudié afin de quantifier et de maîtriser son influence sur la mesure.

La variation de volume due au déplacement du piston de diamètre d au cours du temps peut alors être écrite sous la forme :

$$\frac{\Delta V_m}{\Delta t} = \pi \left(\frac{d}{2} \right)^2 \cdot \left(\frac{x_2 - x_1}{t_2 - t_1} \right), \quad (4.24)$$

avec $(x_2 - x_1)$ le déplacement du piston de diamètre d . Les instants t_1 et t_2 sont déterminés par régression linéaire (Figure 4.2) sur un intervalle centré autour de $\Delta p_{ini} = 0$:

$$t_1 = -\frac{p_{ini} - b_1}{a_1}, \quad (4.25)$$

$$t_2 = -\frac{p_{ini} - b_2}{a_2}, \quad (4.26)$$

où les termes $(a_1; b_1)$ et $(a_2; b_2)$ sont respectivement les pentes et les talons calculés par régression linéaire pour les instants t_1 et t_2 .

Il en est de même pour la détermination de la position du piston avec une régression linéaire afin d'avoir les positions du piston aux instants $t = t_1$ et $t = t_2$).

Finalement, le flux gazeux mesuré est donné par la relation :

$$Q_{Fui} = \frac{p_{ref} + \Delta p_{ini}}{RT_m} \cdot \pi \left(\frac{d^2}{2} \right) \frac{x_2 - x_1}{\frac{p_{ini} - b_1}{a_1} - \frac{p_{ini} - b_2}{a_2}}. \quad (4.27)$$

Ce modèle est valable uniquement si les influences des paramètres que sont les effets d'absorption, la température ou encore les éventuelles fuites sont minimisées ou maîtrisées. Afin de vérifier ces conditions, tous ces paramètres seront étudiés et caractérisés dans la section suivante.

4.2 Qualification du fluxmètre

Nous avons vu qu'il est impératif de limiter les flux parasites lors d'une mesure. En effet, l'équation 4.20 montre que ces flux peuvent avoir différentes origines. Parmi ces flux indésirables, seul celui lié à l'absorption ne nécessite pas d'étude. Il existe un risque de fuite en amont des passages étanches des pistons où la pression est légèrement différente de celle au sein du volume de mesure. D'autre part, la température doit être identique dans les deux volumes et ses variations au cours du temps le plus faible possible afin de limiter les flux d'origine thermique. Par ailleurs, la dérive à court terme du manomètre différentiel entraîne une erreur sur la différence de pression entre les deux volumes et par conséquent des erreurs sur la détermination des instants t_1 et t_2 ainsi que sur les positions x_1 et x_2 du piston. Dans ce qui suit, nous verrons l'influence de ces paramètres ainsi que les moyens mis en œuvre pour en limiter les effets.

4.2.1 Qualification des passages étanches

Comme le montre la figure 4.1, le volume de garde en amont du piston est relié au volume tampon qui est à la pression atmosphérique. Lors de la fermeture des vannes V_2 et V_3 , il apparaît une légère différence de pression au niveau des volumes par rapport à la pression atmosphérique. Un flux gazeux Q_{perte} susceptible d'apparaître entre le volume de garde des passages étanches et le volume de mesure se superpose au flux gazeux issu de la fuite. Les passages étanches avaient été qualifiés initialement à l'aide d'une détection de fuite hélium sous vide [10]. La méthode utilisée consiste à connecter un détecteur de fuite d'hélium sur le volume de mesure. Ensuite, une pression p_{pe} est appliquée au niveau du volume tampon et des passages étanches. Les volumes de référence et de mesure sont évacués à une pression inférieure à 10^{-3} Pa par l'intermédiaire du groupe de pompage du détecteur. Les pistons sont alors actionnés et le détecteur mesure les éventuelles fuites d'hélium. Dans notre cas de figure, les variations de la pression atmosphérique ainsi que l'actionnement des vannes entraînent une différence de pression entre d'une part les volumes V_m et V_{ref} et d'autre part les volumes de gardes des passages étanches, ces différences sont comprises entre -100 et 100 Pa. Il est donc nécessaire de créer une différence de pression entre ces deux parties de ± 100 Pa. Nous ne disposons pas de détecteur d'hélium fonctionnant à la pression atmosphérique mais une autre méthode peut être appliquée. Comme représentée sur la figure 4.3, elle consiste à laisser les volumes de référence et de mesure à la pression atmosphérique et à faire varier la pression dans le volume de garde des pistons de ± 100 Pa à l'aide du système de génération et de son volume tampon V_{Tam} (cf. figure 4.1). Pour chaque palier de pression p_{pe} , les pistons sont actionnés de façon à faire varier en dents de scie autour d'une position de référence pos_{ini} . Au bout de N périodes, l'indication Δp du manomètre différentiel ainsi que le temps écoulé sont relevés au moment du retour à la position initial du piston. Dans cette configuration, puisque le flux résultant de la variation de volume est nul, nous pouvons calculer le flux Q_{pe} provenant des passages étanches :

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

$$Q_{pe}(p_{pe}) = V_M \frac{dp_1 - dp_0}{t_1 - t_0} \quad (4.28)$$

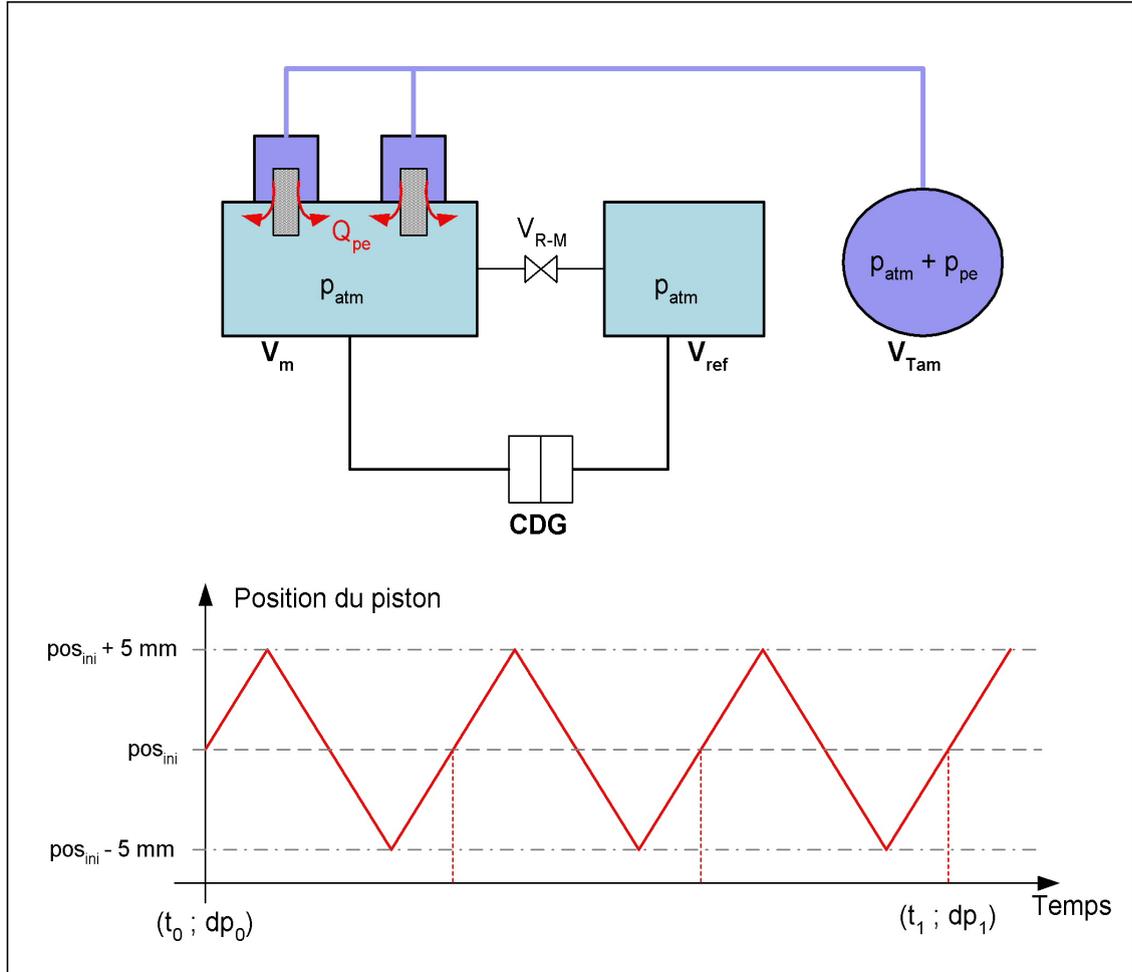


FIGURE 4.3 – Méthode de qualification des passages étanches

Une différence de pression est appliquée au niveau des volumes de garde des passages étanches.

La position du piston varie de 5 mm autour d'une position initiale pos_{ini} . Pour deux passages à cette position initiale, les instants t_0 et t_1 ainsi que les indications du CDG dp_0 et dp_1 sont relevés. Le flux équivalent généré par le déplacement du piston entre ces deux instants est nul, la différence d'indication du CDG est due uniquement au flux gazeux parasites.

La détermination du flux gazeux issu des passages étanches est réalisée dans plusieurs configurations de vitesse de déplacement des pistons et pour plusieurs pressions. Les résultats ne montrent aucune corrélation entre ces paramètres et le flux Q_{Pe} . Le graphique de la figure 4.4 présente les résultats de cette détermination et met

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

en évidence une valeur moyenne de $1,5 \cdot 10^{-7} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Cette valeur constituera une correction systématique à appliquer lors chaque mesure réalisée à l'aide du fluxmètre.

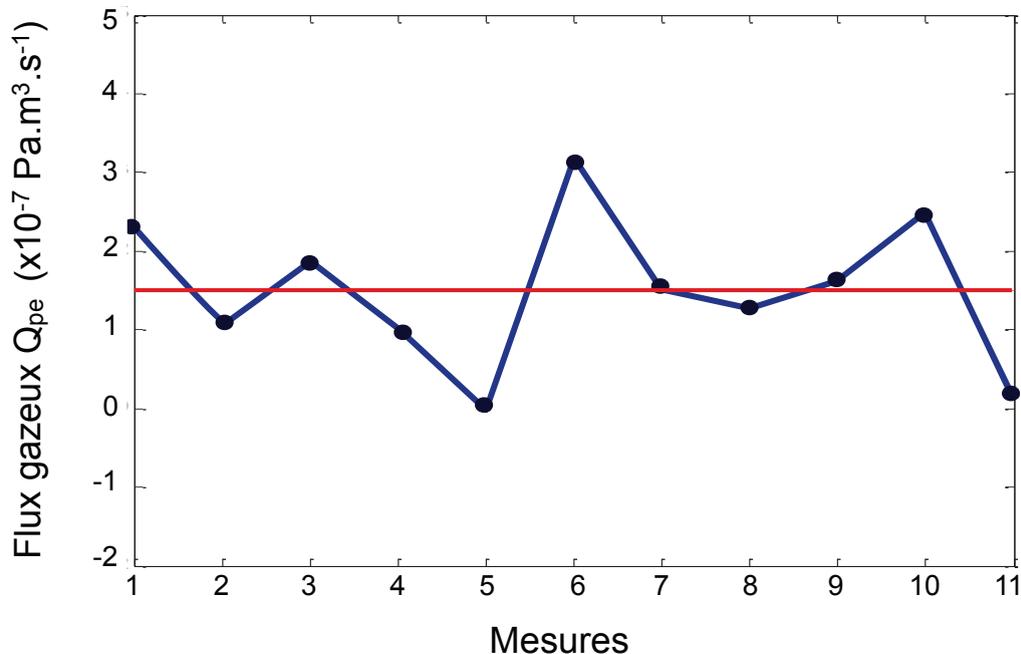


FIGURE 4.4 – Mesure du flux gazeux Q_{pe} issu des passages étanches

4.2.2 Qualification de l'homogénéité et de la stabilité en température

Lors de sa caractérisation sous vide, Boineau [14] a mis en évidence l'influence de la température qui constituait la plus grosse contribution à l'incertitude associée à la mesure d'un flux gazeux et que la maîtrise de la température par un système de régulation apporterait une solution à cette problématique. L'installation d'un caisson était suffisante pour des mesures sous vide mais pas pour celles effectuées à la pression atmosphérique[15]. En effet, comme le montre l'équation 4.20, cette influence est proportionnelle à la pression de référence. Afin de minimiser ces effets, un système de régulation thermique doit être mis en place pour diminuer le flux gazeux d'origine thermique. Pour cela, en plus du caisson d'isolation thermique installé

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

autour des volumes et englobant les différents raccords, vient s'ajouter un circuit, creusé dans la masse du corps trois volumes (figure 4.5), où circule de l'eau provenant d'un bain thermostaté LAUDA type RP100.

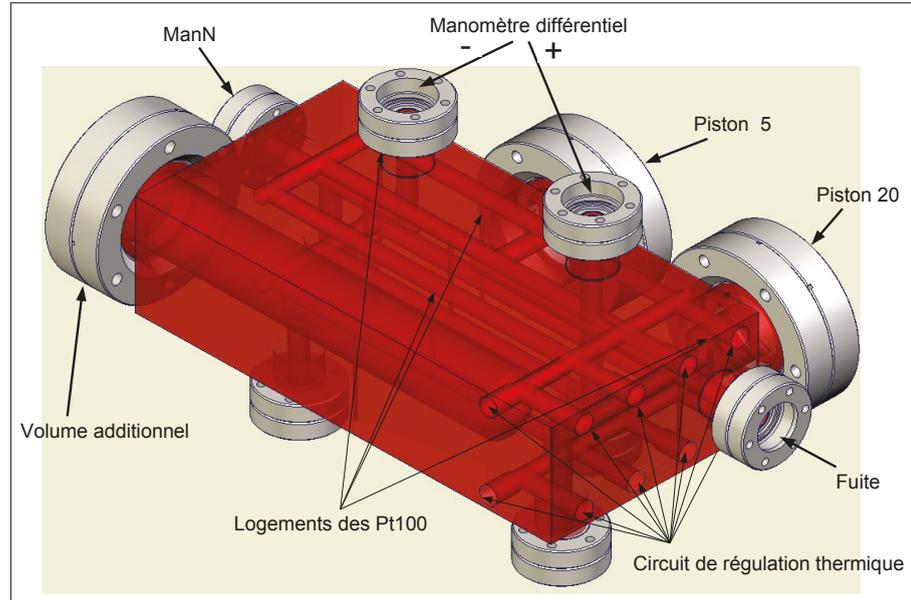


FIGURE 4.5 – Vue du circuit d'eau au sein du corps trois volumes
Le corps trois volumes a une longueur de 20 cm.

Le volume de mesure est compris entre les raccord de la fuite, des deux pistons et de l'entrée + du manomètre différentiel, le volume de référence est quand à lui compris entre l'entrée - du manomètre différentiel est le manomètre numérique ManN.

Le corps trois volumes du fluxmètre est équipé de quatre emplacements où sont logées des sondes de température de type *Pt100* (figure 4.5). Celles-ci sont étalonnées en résistance et identifiées de 1 à 4. La température T est calculée à partir de la résistance R_c lue sur le multimètre conformément à la norme EN 60751/A2 [16] :

$$T = T_{norme}[R_c - e_R(R_c)], \quad (4.29)$$

avec T_{norme} la température de la norme et $e_R(R_c)$ l'écart par rapport à la norme (Annexe C).

Dans le but de caractériser au mieux l'homogénéité et de la stabilité en température, il est indispensable de tenir compte de la dérive des sondes entre leur étalonnage et leur utilisation. Pour ce faire, nous plongeons dans un bain thermostaté, un bloc

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

cylindrique en aluminium dans lequel se trouve quatre emplacements identifiés de A à D où sont logées respectivement les sondes 1 à 4. Dans un premier temps, nous vérifions l'homogénéité de ce bloc en prenant comme référence la température de l'emplacement 1. Les différences de température des trois autres emplacements par rapport à cette référence sont déterminées par une méthode de transposition dite "double pesée de Gauss" [17]. Pour mesurer la différence de température $T_B - T_A$, nous utilisons les capteurs *Pt100* 1 et 2 dont les écarts en température par rapport à la norme sont respectivement e_1 et e_2 . Ces écarts sont donnés par :

$$e_1 = T - T_{norme}(R_1) \quad (4.30)$$

et

$$e_2 = T - T_{norme}(R_2) \quad (4.31)$$

avec R_1 et R_2 les résistances de ces sondes à la température T et T_{norme} la fonction inverse de la norme.

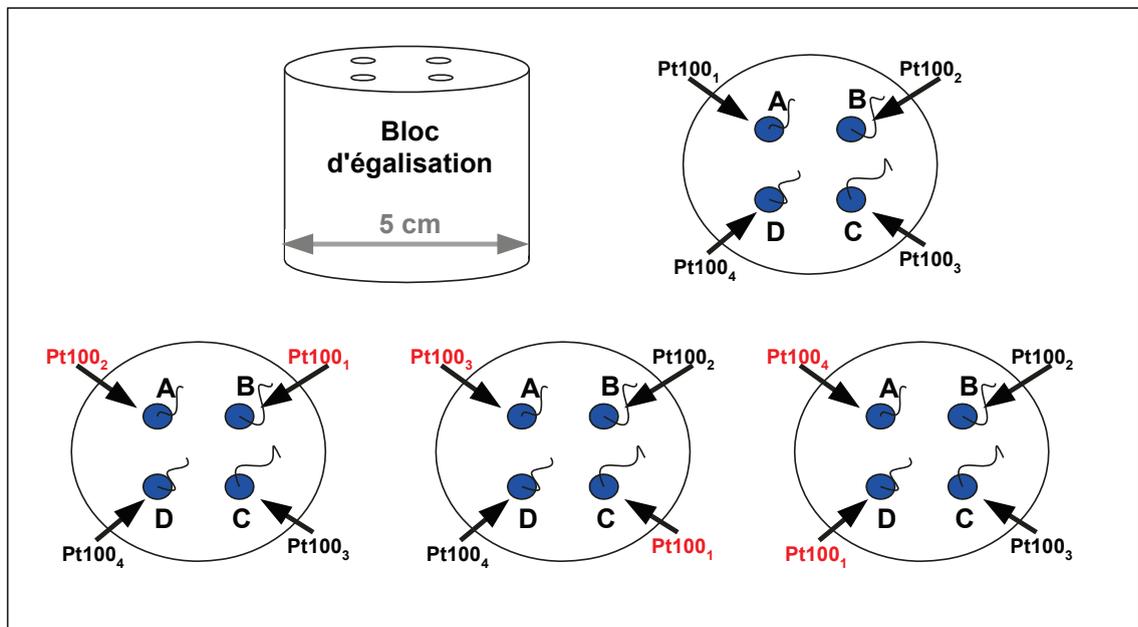


FIGURE 4.6 – Détermination de la dérive des sondes de température

Lors de la première étape, les *Pt100* 1 et 2 sont placées dans les emplacements A et B, nous avons alors :

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

$$T_B - T_A = [T_{norme}(R_{2B}) + e_2] - [T_{norme}(R_{1A}) + e_1] \quad (4.32)$$

soit :

$$T_B - T_A = [T_{norme}(R_{2B}) - T_{norme}(R_{1A})] + e_2 - e_1 \quad (4.33)$$

Au cours de la deuxième étape, la sonde 1 est placée dans l'emplacement B et la sonde 2 dans l'emplacement A, nous avons alors :

$$T_B - T_A = [T_{norme}(R_{1B}) + e_2] - [T_{norme}(R_{2A}) + e_1] \quad (4.34)$$

soit :

$$T_B - T_A = [T_{norme}(R_{1B}) - T_{norme}(R_{2A})] + e_2 - e_1. \quad (4.35)$$

En sommant les expressions 4.33 et 4.35, nous avons :

$$2(T_B - T_A) = [T_{norme}(R_{2B}) - T_{norme}(R_{1A})] - [T_{norme}(R_{1B}) - T_{norme}(R_{2A})]. \quad (4.36)$$

Nous en déduisons la différence réelle de température entre les emplacements A et B :

$$T_B - T_A = \frac{1}{2} [(\Delta T_{2-1})_{\text{etape1}} + (\Delta T_{1-2})_{\text{etape2}}] \quad (4.37)$$

avec $(\Delta T_{2-1})_{\text{etape1}}$ et $(\Delta T_{1-2})_{\text{etape2}}$, les différences brutes de température entre la sonde 1 et 2 lors des deux étapes. De la même façon, les différences de température entre l'emplacement de référence et les emplacements C et D sont déterminées (figure 4.6).

Le tableau 4.2 présente les résultats de la caractérisation de l'homogénéité du bloc en aluminium plongé dans un bain régulé à 19, 20 et 21 °C. Les différences de température des emplacements sont de l'ordre de 1 mK.

Nous pouvons considérer que le bloc est homogène en température et de ce fait déterminer les corrections à appliquer aux sondes 2 à 4. Ces corrections relatives $Corr_{2\grave{a}4}$ sont calculées en prenant la moyenne des écarts constatés au cours des

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

TABLE 4.2 – Homogénéité du bloc aluminium

Emplacement	$T_i - T_A$ (mK)		
	19°C	20°C	21°C
A	0	0	0
B	1,2	1,4	0,6
C	0,6	1,1	0,8
D	-1,2	-1,0	-0,8

deux étapes réalisées lors de la vérification de l'homogénéité du bloc. Pour la sonde 2 nous avons :

$$Corr_2 = \frac{1}{2} [(\Delta T_{2-1})_{\text{etape1}} + (\Delta T_{2-1})_{\text{etape2}}] + e_2 - e_1. \quad (4.38)$$

Finalement, la température de chaque sonde i sera donnée par la relation :

$$T_i = T_{\text{norme}}(R_i) + e_i - Corr_i \quad (4.39)$$

Grâce à cette égalisation thermique, nous pouvons désormais qualifier la stabilité et l'homogénéité en température du fluxmètre avec plus de justesse en évitant d'appliquer la méthode de transposition directement sur le corps du fluxmètre.

4.2.2.1 Stabilité en température

La température du laboratoire où se situe le fluxmètre est réglée à $(20 \pm 1)^\circ\text{C}$. Le flux gazeux d'origine thermique Q_{th} correspond aux deux derniers termes de la relation 4.20. Ce flux est proportionnel aux variations de température au cours du temps. Afin de minimiser celui-ci, il est indispensable de réguler le fluxmètre en température, pour se faire un système de régulation à été mis en place en creusant directement des canalisations au sein du corps du fluxmètre dans lesquelles circule de l'eau provenant d'un bain régulé en température. L'étude de la stabilité en température est réalisée à l'aide des quatre sondes sur une durée de deux heures, comme le montre le graphique de la figure 4.7, les variations temporelles de température sont inférieures à $0,1 \text{ mK} \cdot \text{min}^{-1}$.

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

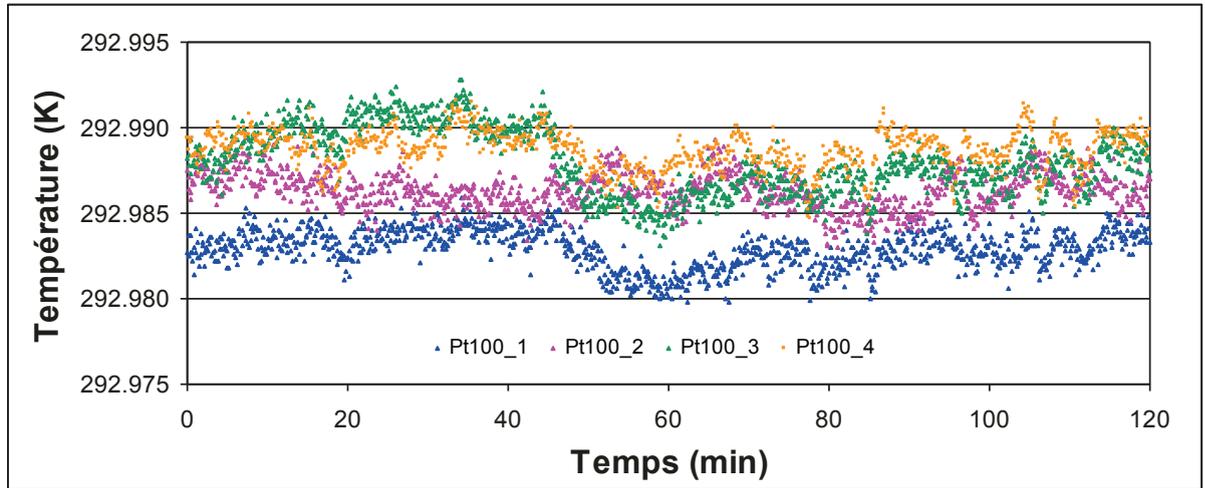


FIGURE 4.7 – Stabilité de l’indication des sondes de températures

4.2.2.2 Homogénéité de la température

La première détermination de l’homogénéité en température du corps du fluxmètre avait été effectuée en absence de caisson d’isolation et de système de régulation thermique [10], contrairement à la seconde qui vient être effectuée où ce système est activé. Dans les deux cas, les pistons sont mis en action afin de reproduire au mieux les conditions réelles de fonctionnement du fluxmètre.

Les indications des quatre sondes de température sont relevées. Les résultats, reportés dans les tableaux 4.3 et 4.4, montrent que le système de régulation permet d’améliorer de manière significative l’homogénéité du corps du fluxmètre. La différence maximale de température est de 5 mK alors que sans régulation elle avoisinait les 30 mK.

TABLE 4.3 – Homogénéité du corps trois volumes sans système de régulation

Emplacement i	$T_i - T_A$ (mK)	
	Piston 5	Piston 20
A	0	0
B	12	10.1
C	16.6	13.5
D	-12.7	-11.3

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

TABLE 4.4 – Homogénéité du corps trois volumes avec système de régulation

Emplacement i	$T_i - T_A$ (mK)	
	Piston 5	Piston 20
A	0	0
B	1.2	1.3
C	4.2	5.0
D	2.8	2.8

La caractérisation en température a permis de dégager deux valeurs significatives que sont l'homogénéité, avec une différence de température maximale de 5 mK, et la stabilité en température sur une période de 120 minutes correspondant au temps maximum de mesure, qui est estimée à 0,1 mK.min⁻¹. Ces deux valeurs seront considérées pour le calcul de l'incertitude sur la température associée au flux gazeux mesuré Q .

4.2.3 Étude du flux gazeux d'origine thermique

Les variations de température au sein des volumes produisent un flux gazeux d'origine thermique. En effet, l'équation 4.20 nous montre que ce flux se produit à la fois dans le volume de mesure et dans le volume de référence nous pouvons l'exprimer en débit molaire :

$$Q_{m-th} = \frac{k}{R} \cdot \left[V_m \cdot \frac{p_{ref}}{T_{ref}} \cdot \frac{\Delta T_{ref}}{\Delta t} - V_m \cdot \frac{p_m}{T_m} \cdot \frac{\Delta T_m}{\Delta t} \right] \quad (4.40)$$

soit un flux gazeux en unité pression-volume :

$$Q_{th} = V_m \cdot \frac{p_0}{T_0} \cdot \left[\frac{\Delta T_{ref}}{\Delta t} - \frac{\Delta T_m}{\Delta t} \right] \quad (4.41)$$

où nous avons considéré les températures et les pressions égales au sein des deux volumes.

Cette relation nous permet de constater que le flux gazeux d'origine thermique ne dépend que de la différence de variation temporelle de température des deux volumes. Lors de la qualification du fluxmètre sous vide [15], il a été mis en évidence

une dispersion des mesures liée à ce flux parasite qui contribuait à 85 % de l'incertitude de mesure. L'installation d'une enceinte thermique a permis de rendre ce flux négligeable, mais comme le montre la relation 4.41, ce flux est proportionnel à la pression de référence. Par conséquent, il devient indispensable de reconsidérer le flux gazeux thermique pour des mesures référencées à la pression atmosphérique. Grâce au système de régulation en température et compte tenu uniquement des indications des sondes de température, l'observation des mesurages nous montre que ces variations sont identiques, ce qui nous donnerait, *a priori*, un flux d'origine thermique nul. Néanmoins, nous verrons lors de la caractérisation de l'incertitude associée à ce flux, qu'il convient de tenir compte d'une éventuelle différence entre l'indication des sondes et les températures réelles du gaz au sein des volumes.

4.2.4 Étude de la dérive du manomètre différentiel

Le capteur de pression différentielle MKS est susceptible de présenter une dérive à court terme du zéro pendant le temps de mesure. Dans ce qui suit, nous allons caractériser cette dérive et étudier son influence sur la mesure du flux gazeux. La dérive du capteur de pression différentielle doit être quantifiée. Pour cela, nous allons dans un premier temps, enregistrer la valeur du zéro de ce capteur au repos sur une durée d'une heure afin de mesurer les fluctuations de ce signal, puis dans un second temps, vérifier le retour à zéro lorsque la pression varie sur toute l'étendue de mesure du capteur. Cette étude montre que la dérive maximale à court terme $d_{\Delta p}$ du signal Δp est de 0,005 Pa.

Cette dérive $d_{\Delta p}$ entraîne une erreur sur la valeur de Δp (cf. §4.1.3) et par conséquent une erreur sur les déterminations des instants t_1 et t_2 pour lesquels $\Delta p = 0$ et sur les positions du piston x_1 et x_2 correspondantes.

La détermination de ces quatre paramètres se font à partir de régressions linéaires (cf. § 4.1.3). Deux cas figures peuvent être considérés, l'un lorsque $\Delta p = 0$ est pris en compte avec le piston en phase mobile et l'autre dans le cas où le piston est immobile. Lorsque le piston est en phase mobile et dans l'hypothèse où le volume

4.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE

est constant, la pente du signal $\Delta p(t)$ est déduite en utilisant la définition du flux gazeux de l'équation 2.1 et à l'aide de l'équation 4.5 :

$$\frac{d(\Delta p)}{dt} = \frac{Q_{fui} \times (1 - k)}{V_m}. \quad (4.42)$$

La pente du signal $x(t)$ correspond à la vitesse de déplacement du piston, soit d'après l'équation 4.1 :

$$\frac{dx}{dt} = \frac{Q_{pist}}{S \cdot p_0} = \frac{k_0 \cdot Q_{fui}}{S \cdot p_0}. \quad (4.43)$$

En considérant la dérive maximale précédemment définie, nous pouvons estimer les erreurs maximales $(e_{t_2-t_1})_{cas1}$ commises sur le temps de mesure et $(e_{x_2-x_1})_{cas1}$ sur le déplacement du piston à partir respectivement des pentes des signaux $\Delta p(t)$ et $x(t)$. Nous avons donc :

$$(e_{t_2-t_1})_{cas1} = \frac{V_m}{Q_{fui}} \frac{1}{|1 - k_0|} \times d_{\Delta p} \quad (4.44)$$

et

$$(e_{x_2-x_1})_{cas1} = \frac{V_m}{S p_0} \frac{k_0}{|1 - k_0|} \times d_{\Delta p}. \quad (4.45)$$

Dans le cas où la détermination de ces quatre paramètres se fait lorsque le piston est en phase immobile, la pente du signal $\Delta p(t)$ est donnée, dans l'hypothèse de la constance du volume, par :

$$\frac{d(\Delta p)}{dt} = \frac{Q_{fui}}{V_m}. \quad (4.46)$$

Étant donné que le piston est immobile, la pente du signal $x(t)$ est nulle :

$$\frac{dx}{dt} = 0. \quad (4.47)$$

Les erreurs maximales dues à la dérive $d_{\Delta p}$ sont alors :

$$(e_{t_2-t_1})_{cas2} = \frac{V_m}{Q_{fui}} \times d_{\Delta p} \quad (4.48)$$

et

$$(e_{x_2-x_1})_{cas2} = 0. \quad (4.49)$$

En comparant les deux cas de figures, nous constatons qu'il est possible de s'affranchir de l'erreur due à la dérive commise sur la détermination du déplacement en considérant uniquement les phases où le piston est immobile. De plus, sachant que le facteur k_0 est choisi proche de 2 nous avons :

$$(e_{t_2-t_1})_{cas1} \approx (e_{t_2-t_1})_{cas2}. \quad (4.50)$$

La dérive du signal Δp engendre une erreur sur la détermination du temps de mesure dont il faudra tenir compte dans le bilan d'incertitude.

4.3 Budget d'incertitude

La définition du flux gazeux mesuré est relativement simple. Cependant nous avons vu dans ce chapitre que sa mesure dépend de bon nombre de paramètres. L'étude du modèle mathématique ainsi que la qualification du fluxmètre nous permettent d'établir un modèle final conduisant à l'équation suivante :

$$Q_{Fui} = \frac{p_{ref} + \Delta p_{ini}}{RT_m} \cdot S \cdot \frac{x_2 - x_1}{\frac{p_{ini}-b_1}{a_1} - \frac{p_{ini}-b_2}{a_2}} + Q_{Pe} + Q_{th}. \quad (4.51)$$

L'incertitude-type relative sur la mesure du flux gazeux molaire à l'aide du fluxmètre Q_{fui} est calculée à partir de la loi de propagation des variances dans l'hypothèse où toutes les composantes sont indépendantes :

$$\begin{aligned} \left(\frac{u(Q_{fui})}{Q_{fui}} \right)^2 &= \sqrt{\left(\frac{u(T)}{T} \right)^2 + \left(\frac{u(S)}{S} \right)^2 + \left(\frac{u(p_0)}{p_0} \right)^2 + \left(\frac{u(x_2 - x_1)}{x_2 - x_1} \right)^2} \\ &\quad + \left(\frac{u(t_2 - t_1)}{t_2 - t_1} \right)^2 + \left(\frac{u(Q_{Pe})}{Q_{fui}} \right)^2 + \left(\frac{u(Q_{th})}{Q_{fui}} \right)^2. \end{aligned} \quad (4.52)$$

Dans cette section, nous estimerons l'incertitude associée à chacune de ces composantes, selon les recommandations du *guide pour l'expression de l'incertitude de*

4.3. BUDGET D'INCERTITUDE

mesure (GUM)[18]. Pour les pistons, les manomètres, les capteurs de température ainsi que l'horloge, nous nous baserons sur l'étude réalisée par Boineau [10] lors de la conception du fluxmètre.

4.3.1 Pistons

La variation de volume nécessaire pour maintenir la pression $\Delta p = 0$ résulte du produit de la surface S du piston par son déplacement $x_2 - x_1$.

Surfaces des pistons

Les pistons ont été étalonnés par le département *Mesures Dimensionnelles* du LNE. Pour se faire, deux diamètres perpendiculaires sont mesurés pour trois sections situées respectivement à 5, 15 et 25 mm afin de caractériser les pistons sur leurs courses utiles. Les deux diamètres sont mesurés par comparaison interférométrique à la longueur d'un tampon de référence. Pour chaque section une mesure de circularité est également réalisée. Le diamètre d du piston est la moyenne des six diamètres mesurés.

Les tableaux 4.5 et 4.6 regroupent les composantes d'incertitude des deux pistons d'après le département *Mesures Dimensionnelles* :

TABLE 4.5 – Incertitude sur le diamètre du piston 5 mm

Piston de diamètre $d = 5,02245$ mm					
Composantes	Incetitude type sur la composante	Unité	Distribution	Coefficient de sensibilité ($\mu\text{m}\cdot\text{unité}^{-1}$)	Incetitude type μm
Étalonnage diamètre	0,060	μm	Normale	1	0,060
Répétabilité	0,37	μm	Normale	1	0,37
Circularité	0,37	μm	Rectangulaire	1	0,37
Coefficient de dilatation linéique du piston de $1,2 \cdot 10^{-6}\text{K}^{-1}$	0,58	K	Rectangulaire	$1,2 \cdot 10^{-6}$	0,000
Incetitude élargie en μm ($k=2$)					1,1

4.3. BUDGET D'INCERTITUDE

TABLE 4.6 – Incertitude sur le diamètre du piston 20 mm

Piston de diamètre d = 19,9968 mm					
Composantes	Incertitude type sur la composante	Unité	Distribution	Coefficient de sensibilité ($\mu\text{m}\cdot\text{unité}^{-1}$)	Incertitude type μm
Étalonnage diamètre	0,36	μm	Normale	1	0,36
Répétabilité	1,8	μm	Normale	1	1,8
Circularité	0,92	μm	Rectangulaire	1	0,92
Coefficient de dilatation linéique du piston de $1,2 \cdot 10^{-6}\text{K}^{-1}$	0,58	K	Rectangulaire	$1,2 \cdot 10^{-6}$	0,000
Incertitude élargie en μm ($k=2$)					4,1

Les incertitudes relatives élargies sur les diamètres des deux pistons sont par coïncidence de $2,1 \cdot 10^{-4}$, soit une incertitude relative élargie de $4,2 \cdot 10^{-4}$ pour la surface.

Déplacement du piston

La mesure du déplacement des pistons se fait à l'aide de codeurs angulaires à détection optique. Le signal numérique de ces codeurs est ensuite converti en déplacement à partir de la valeur théorique du pas de vis de 1 mm par tour. L'étalonnage des déplacements a été réalisé à l'aide d'un interféromètre laser dans lequel un miroir est placé sur l'extrémité du piston et un autre au fond d'un support métallique qui remplace le corps du fluxmètre. À partir de leurs positions initiales x_0 , les pistons sont déplacés sur une course de 25 mm. Pour dix points de mesure, le déplacement Δx_{int} mesuré par l'interféromètre est relevé ainsi que l'indication de déplacement Δx_{lu} lue par le codeur. Pour chaque piston, un facteur de corrections linéaire k_{pist} est déterminé et sera appliqué pour chaque lecture de déplacement. Les tableaux 4.7 et 4.8 tiennent compte de l'écart au modèle $e_x = \Delta x - \Delta x_{int}$. Les incertitudes élargies associées à la lecture du déplacement des pistons de 5 et 20 mm sont respectivement de 7,9 et 8,6 μm .

4.3. BUDGET D'INCERTITUDE

TABLE 4.7 – Incertitude sur le déplacement du piston 5 mm

Déplacement du piston 5 mm					
Composantes	Incertitude type sur la composante	Unité	Distribution	Coefficient de sensibilité ($\mu\text{m}\cdot\text{unité}^{-1}$)	Incertitude type μm
Étalonnage déplacement	1,1	μm	Normale	1	1,1
Dérive (estimée)	1,2	μm	Rectangulaire	1	1,2
Écart au modèle max	4,7 μm				
Incertitude type (u) en μm					1,6
Incertitude élargie en μm ($k=2$) : $2u + e_x$					7,9

TABLE 4.8 – Incertitude sur le déplacement du piston 20 mm

Déplacement du piston 20 mm					
Composantes	Incertitude type sur la composante	Unité	Distribution	Coefficient de sensibilité ($\mu\text{m}\cdot\text{unité}^{-1}$)	Incertitude type μm
Étalonnage déplacement	0,65	μm	Normale	1	0,65
Dérive (estimée)	1,2	μm	Rectangulaire	1	1,2
Écart au modèle max	5,9 μm				
Incertitude type (u) en μm					1,3
Incertitude élargie en μm ($k=2$) : $2u + e_x$					8,6

4.3.2 Manomètres

La mesure de la pression dans le volume de référence est effectuée à l'aide du manomètre de pression absolue. Un manomètre de pression différentielle entre les deux volumes mesure la différence de pression entre ces deux volumes. Ces deux manomètres sont étalonnés au sein du département *Pression-Vide*.

Incertitude sur la mesure de la pression de référence

Le manomètre numérique de type résonant *ManN* mesure la pression au sein du volume de référence sur la gamme comprise entre 10 et 130 kPa. Il est étalonné à l'aide d'une balance de pression absolue. L'incertitude élargie sur la mesure de la pression par ce manomètre est de 23 Pa. Puisque cette pression est par défaut celle de la pression atmosphérique, nous avons une incertitude relative élargie de $2,3 \cdot 10^{-4}$.

Manomètre différentiel

Le manomètre de pression différentielle est utilisé comme détecteur de zéro, sa sensibilité étant estimée identique autour de $\Delta p = 0$. Celui-ci ne nécessite donc pas d'étalonnage mais il est indispensable de tenir compte de la dérive à court terme dont nous avons fait l'étude dans la section 4.2.4. En effet, nous avons vu que cette dérive entraîne une erreur sur la détermination du temps de mesure, dont l'incertitude sera abordée dans la section relative au temps de mesure.

4.3.3 Détermination de la température du gaz

Les capteurs de température sont étalonnés en résistance et utilisés comme le décrit l'annexe C. Le tableau 4.9 présente l'incertitude associée à la chaîne de température (capteur et multimètre).

4.3. BUDGET D'INCERTITUDE

TABLE 4.9 – Incertitude sur la température indiquée par la chaîne de mesure

Capteurs de température Pt100					
Composantes	Incertitude type sur la composante	Unité	Distribution	Coefficient de sensibilité (K.unité ⁻¹)	Incertitude type K
Étalonnage du capteur	0,025	<i>K</i>	Normale	1,0	0,025
Étalonnage du multimètre	0,0015	Ω	Normale	2,5	0,0038
Dérive du capteur	0,0087	<i>K</i>	Rectangulaire	1,0	0,0087
Auto-échauffement	Négligeable				
Écart au modèle : b_1	0,001 K				
Incertitude type (u) en K					0,023
Incertitude élargie en K ($k=2$) : $2u + b_1$					0,054

Cette incertitude correspond uniquement à celle associée à la chaîne de mesure. Les valeurs de stabilité et d'homogénéité obtenues lors de la qualification en température doivent également être prises en compte.

Les écarts d'homogénéité du fluxmètre sont au maximum de 5 mK ce qui introduit une composante sur l'incertitude associée à la détermination de la température du gaz. Nous pouvons également nous demander si les capteurs de température, insérés dans le corps du fluxmètre à proximité des différents volumes, détectent les réelles variations de température du gaz au sein de ces volumes. Une étude des données expérimentales consistant à comparer les variations de température mesurées par les capteurs aux variations de pression dans le volume de référence nous permet, à partir de la relation 2.1 et dans l'hypothèse de petites variations de pression d'un gaz parfait, de déterminer les variations de température correspondantes :

$$\frac{\Delta T_{ref}}{\Delta t} = \frac{T_{ref}}{p_{ref}} \cdot \frac{\Delta p_{ref}}{\Delta t}. \quad (4.53)$$

Le graphique de la figure 4.3.3 présente les résultats de ces déterminations effectuées à partir des données expérimentales de 70 mesures de flux.

Ces résultats nous montrent que les variations de température calculées à partir des variations de pression est de 1 mK.min⁻¹ au maximum alors que celles indiquées par les capteurs étaient inférieures à 0,1 mK.min⁻¹. Étant donné que le temps de

4.3. BUDGET D'INCERTITUDE

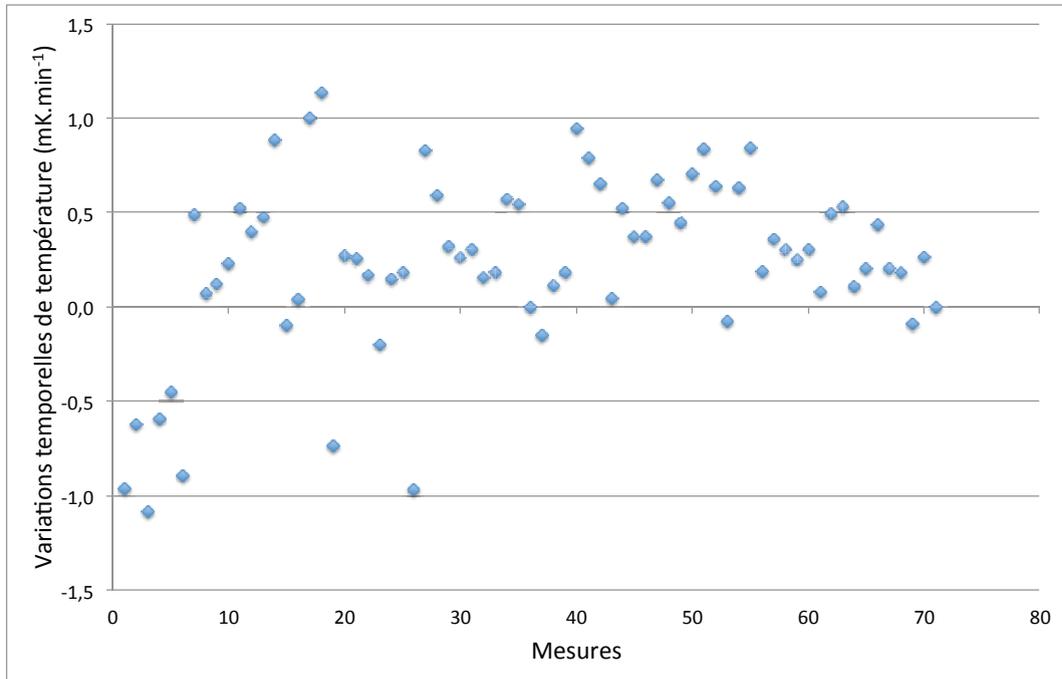


FIGURE 4.8 – Variations temporelles de température à partir des mesures de variations de pression

mesure maximum est de 60 minutes, nous avons, dans le cas le plus défavorable, un écart maximum sur la détermination de la température de 60 mK dont il faudra tenir compte dans l'incertitude.

Le tableau 4.10 présente le bilan d'incertitude associée à la détermination de la température.

TABLE 4.10 – Incertitude sur la détermination de la température du gaz

Détermination de la température du gaz					
Composantes	Incrtitude type sur la composante	Unité	Distribution	Coefficient de sensibilité (K.unité ⁻¹)	Incrtitude type K
Capteur de température	0,027	K	Normale	1	0,027
Homogénéité	0,003	K	Normale	1	0,003
Température du gaz	0,017	K	Rectangulaire	1	0,017
Incrtitude type (u) en K					0,033
Incrtitude élargie en K (k=2)					0,066

Finalement, l'incertitude élargie sur la détermination de la température du gaz

est de 66 mK.

4.3.4 Incertitude sur la détermination du temps de mesure

Le temps de mesure ($t_1 - t_2$) est déterminé à l'aide de l'horloge de l'ordinateur et son incertitude-type relative associée est inférieure à $1 \cdot 10^{-4}$. Par ailleurs, il convient de tenir compte de l'influence de la dérive à court terme du manomètre de pression différentielle. En effet, lors de la qualification du fluxmètre, nous avons mis en évidence l'erreur maximale commise sur la détermination de intervalle de temps. Comme le montre l'équation 4.48, cette erreur dépend du flux mesuré, du volume ainsi que de la dérive du signal Δp_0 qui est déterminée expérimentalement à 5 mPa sur une durée de 3600 secondes. Pour la gamme de mesure du fluxmètre comprise entre $1 \cdot 10^{-6} \text{ Pa} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ et $2 \cdot 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$, l'erreur relative maximale sur la détermination du temps de mesure est de $6,0 \cdot 10^{-5}$. L'incertitude relative élargie sur la détermination du temps de mesure est donc de $2,4 \cdot 10^{-4}$.

4.3.5 Incertitude sur le flux gazeux d'origine thermique

Nous avons vu que la mise en place du système de régulation thermique nous permettait de minimiser le flux gazeux d'origine thermique. Tout comme pour la détermination de l'incertitude sur la température du gaz, nous devons tenir compte de la différence entre les indications des $Pt100$ et les températures réelles du gaz. Au niveau du volume de référence, il a été constaté qu'à partir des variations de pression, il existait des variations temporelles de températures au maximum égales à $1 \text{ mK} \cdot \text{min}^{-1}$ (cf. § 4.3.3). Par contre, nous ne sommes pas en mesure d'identifier les variations de pressions d'origine thermique au niveau du volume de mesure. Compte tenu de la stabilité en température, nous pouvons émettre l'hypothèse que les variations de températures sont de même nature dans les deux volumes avec une dispersion maximale de $1 \text{ mK} \cdot \text{min}^{-1}$. Il est alors possible de déterminer une incertitude sur la différence de variation temporelle de température. En tenant compte de la corrélation entre ces deux variations, l'incertitude type sur cette différence

4.3. BUDGET D'INCERTITUDE

est de $3,1 \text{ mK} \cdot \text{min}^{-1}$, soit une incertitude élargie associée au flux gazeux d'origine thermique de $9,6 \cdot 10^{-8} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

4.3.6 Incertitude sur le flux gazeux issu des passages étanches

Lors d'une mesure, le flux gazeux issu des passages étanches se superpose au flux débité par la fuite, la correction à appliquer est de $1,5 \cdot 10^{-7} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (cf. §4.2.1). L'incertitude sur cette correction est donnée par l'écart-type des mesures qui ont permis de déterminer cette valeur et vaut $1 \cdot 10^{-7} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ soit $4,1 \cdot 10^{-11} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$.

4.3.7 Bilan d'incertitudes

Au cours de cette section, nous avons caractérisé l'incertitude de type B associée à la mesure d'un flux gazeux. Bien que les incertitudes associées aux composantes dont l'étalonnage est réalisable soient évidentes, il a fallu pour les autres considérer les cas de figure les plus défavorables. Le tableau 4.11 présente le bilan d'incertitude associé à la mesure d'un flux gazeux.

TABLE 4.11 – Bilan d'incertitude du fluxmètre à pression constante

Bilan d'incertitude					
Composantes	Incetitude type sur la composante	Distribution	Coefficient de sensibilité	Incetitude type (mol.s⁻¹)	Incetitude type 10⁻⁴ × Q
Pression	$1,2 \cdot 10^{-4} \cdot p_0$	Normale	Q/p_0	0	1,2
Surface	$2,1 \cdot 10^{-4} \cdot S$	Rectangulaire	Q/S	0	2,1
Déplacement	$4,9 \cdot 10^{-4} \cdot (x_2 - x_1)$	Normale	$Q/(x_2 - x_1)$	0	4,0
Température	0,033K	Normale	Q/T	0	1,2
Temps de mesure	$1,2 \cdot 10^{-4} \cdot dt$	Normale	Q/dt	0	1,2
Flux thermique	$2,0 \cdot 10^{-11}$	Normale	1	$2,0 \cdot 10^{-11}$	0
Flux gazeux Passages étanches	$4,1 \cdot 10^{-11}$	Normale	1	$4,1 \cdot 10^{-11}$	0
Incetitude type (u)				$4,6 \cdot 10^{-11}$	5,0
Incetitude élargie (k=2)				$9,2 \cdot 10^{-11}$	10

L'incertitude de mesure élargie ($k = 2$) associée au fluxmètre est de :

4.3. BUDGET D'INCERTITUDE

$$U_{Q_m} = (9,2 \cdot 10^{-11} + 1,0 \cdot 10^{-3} \times Q_m) \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}. \quad (4.54)$$

Le talon de cette incertitude, dû aux deux flux parasites, est très pénalisant pour la mesure de débits inférieurs à $3,0 \cdot 10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ où l'incertitude relative élargie est supérieur à 5%.

Maintenant que le fluxmètre gazeux à pression constante est caractérisé, nous allons nous intéresser au fluxmètre infrarouge pour la mesure de débit de CO_2 .

Chapitre 5

Le fluxmètre infrarouge

Les gaz frigorigènes sont visés par le protocole de Kyoto relatif aux gaz à effet de serre qui impose notamment d'en réduire et d'en contrôler les émissions. En réponse à cette directive, le règlement européen n°842/2006 impose le contrôle en matière de confinement, d'utilisation, ou encore de récupération des produits et des équipements contenant ces gaz. Cela passe par un contrôle d'étanchéité de tous les équipements contenant plus de 3 kg de ces fluides. La norme européenne EN 14624 préconise l'utilisation de fuites étalonnées de fluides frigorigènes dont le débit varie entre $1 \text{ g} \cdot \text{an}^{-1}$ et $50 \cdot \text{g} \cdot \text{an}^{-1}$ ($7,2 \cdot 10^{-10}$ à $3,6 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$)[19]. Celles-ci doivent être raccordées à un étalon primaire qui n'existait pas à ce moment. En partenariat avec le Centre d'Energétique et des Procédés (CEP) de l'École des Mines de Paris, le LNE a donc développé le fluxmètre infrarouge afin de répondre à ce besoin. À ce jour, cet étalon permet de mesurer des débits de fuite de R134-a sur cette gamme. Après avoir détaillé les éléments constituant le fluxmètre infrarouge, nous verrons dans ce chapitre son principe de fonctionnement général puis nous nous intéresserons à l'élément le plus important : le spectromètre photo-acoustique. Nous ferons ainsi le point sur les spécifications actuelles de ce fluxmètre infrarouge. Ensuite, nous nous concentrerons sur l'adaptation et la caractérisation de celui-ci pour la mesure de débits de fuites de CO_2 . Pour clore ce chapitre, nous ferons le point sur les nouvelles caractéristiques métrologiques du fluxmètre.

5.1 Principe du fluxmètre infrarouge

Développé initialement par le CEP, le principe du fluxmètre infrarouge consiste à mesurer, sur un intervalle de temps t , la variation de la concentration C du gaz émis par la fuite au sein d'un volume d'accumulation V_{acc} fermé dans lequel il n'y a initialement aucune trace du gaz à mesurer. Le volume est à une pression p_{acc} proche de la pression atmosphérique et à une température T proche de 20°C. Le débit molaire se déduit directement des équations 2.1 et 2.2 ainsi que de la loi des gaz parfaits :

$$Q_m = \frac{V_{acc}}{M} \cdot \frac{\partial \left(\frac{C \cdot p_{acc}}{T} \right)}{\partial t}, \quad (5.1)$$

avec M est la masse molaire du gaz et T la température thermodynamique du gaz.

Le schéma fonctionnel du fluxmètre infrarouge est représenté sur la figure 5.1. Le déroulement d'une mesure du débit d'une fuite s'effectue en plusieurs étapes. Dans un premier temps, il est impératif de s'assurer que toutes les vannes du fluxmètre soient fermées. Dans le but d'éliminer toute trace du gaz à analyser, on effectue un rinçage du volume d'accumulation en mettant en marche une pompe primaire sèche jusqu'à ce que le vide résiduel soit inférieur à 7000 Pa . Le volume est ensuite rempli d'air reconstitué (80% d'azote et 20% d'oxygène) par l'intermédiaire d'un régulateur de pression jusqu'à atteindre la pression atmosphérique qui sera mesurée par le manomètre numérique résonant « Druck DPI 142 ». Puis la fuite à mesurer, sur laquelle peut être installée une sonde de température de type $Pt100$, est connectée en amont de la vanne V_1 du fluxmètre. Les vannes V_{Min} et V_{Mout} reliant le spectromètre photo-acoustique (PAS) et le volume d'accumulation sont alors ouvertes. Le circuit est constitué de ces deux éléments et des raccords qui les relient. À l'instant $t = 0$ la concentration molaire C du gaz est nulle, la vanne V_1 est alors ouverte et la fuite débite dans le volume d'accumulation. La concentration C se met alors à augmenter. Un ventilateur interne au volume permet d'homogénéiser le gaz dans le volume d'accumulation. Chaque minute, le PAS prélève un échantillon du gaz et en mesure la concentration jusqu'à ce que le seuil limite soit atteint. L'équation 5.1 permet de

calculer le débit à partir de la variation temporelle de la concentration du gaz dans le volume d'accumulation selon .

Au vu de la relation 5.1, le flux gazeux Q_m dépend de cinq paramètres physiques dont trois nous sont imposés. La température et la pression sont choisies de manière à correspondre aux conditions d'utilisation des fuites c'est à dire à 20°C et à la pression atmosphérique et la masse molaire du gaz contenu dans la fuite est un paramètre fixe et connu. Les deux autres paramètres que sont le volume et la concentration sont donc les plus importants et doivent donc faire l'objet une étude plus approfondie.

5.1.1 Le spectromètre photo-acoustique

Le spectromètre photo-acoustique (PAS d'après l'anglais photo-acoustic spectrometer) est un analyseur de gaz « Innova 1314 » dont le principe repose sur l'effet photo-acoustique (annexe D). La figure 5.2 représente notre PAS où le gaz à analyser circule en continu entre l'entrée et la sortie, puis à chaque mesure un échantillon de gaz est aspiré dans la chambre de mesure où il est irradié par la source lumineuse infrarouge. Cette source lumineuse, focalisée à l'aide d'un miroir parabolique, passe par un hacheur, traverse un filtre optique qui sélectionne une largeur de bande où le gaz à mesurer absorbe et pénètre dans la chambre de mesure photo-acoustique. Lorsque la lumière est absorbée par l'échantillon, le gaz s'échauffe et se dilate, provoquant une augmentation de pression dans la chambre. La source lumineuse étant transmise de manière pulsée, la réponse en pression en sera de même. Les ondes de pression ainsi émises sont mesurées par deux microphones. La relation entre la la pression acoustique mesurée par les microphone p_{PAS} et la concentration du gaz à mesurer C_{PAS} est linéaire [20][8] et est donnée par :

$$C_{PAS} = Z_{PAS} \cdot p_{PAS} \quad (5.2)$$

où Z_{PAS} est un coefficient de proportionnalité.

Afin de déterminer le coefficient Z_{PAS} , il suffit donc de relever la réponse en tension des microphones, elle-même linéaire à la pression acoustique (annexeD),

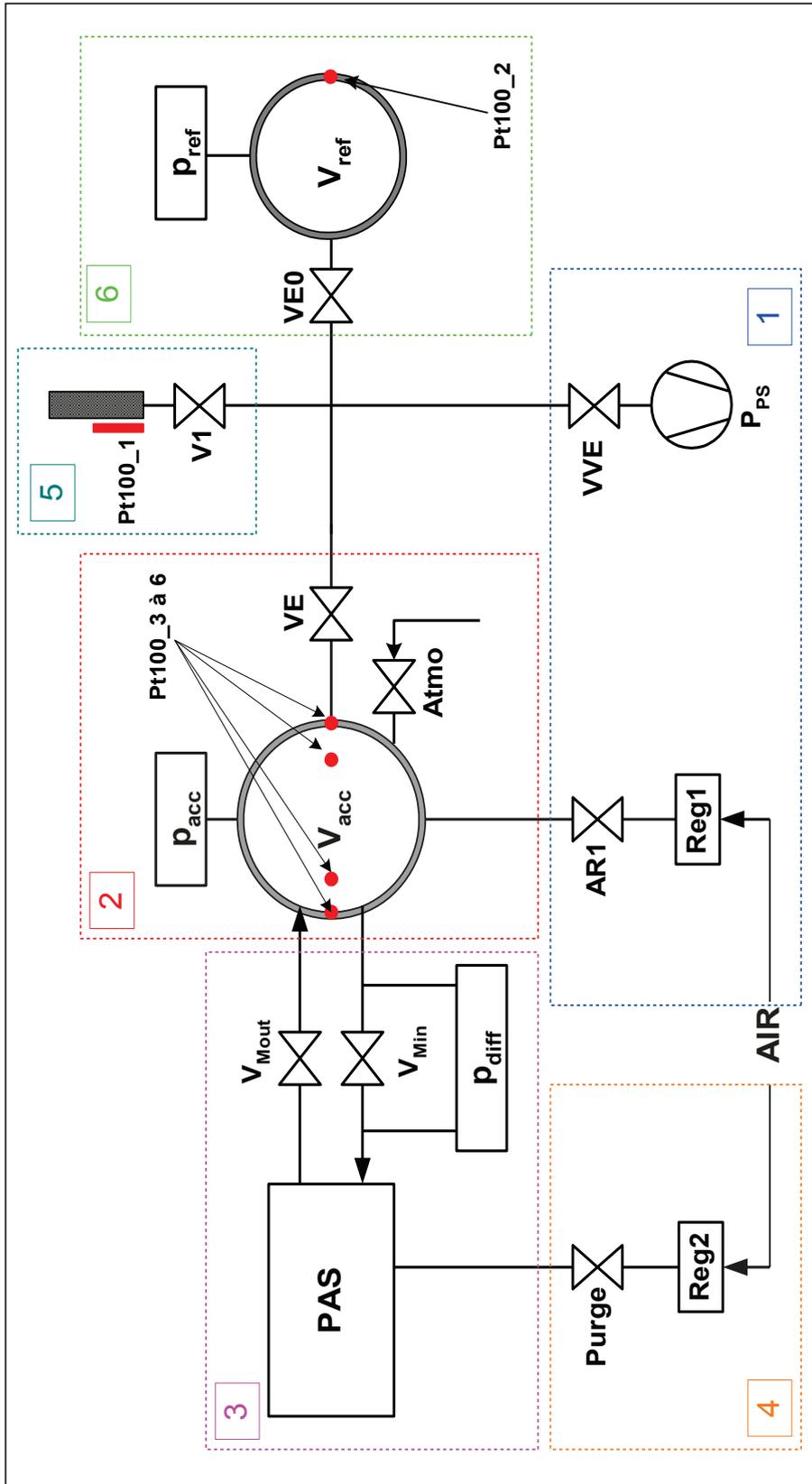


FIGURE 5.1 – Schéma fonctionnel du fluxmètre infrarouge

- (1) Rincage du fluxmètre avec (VVE) : vanne à soufflet; (P_{ps}) : pompe primaire sèche. Remplissage du volume d'accumulation avec ($Reg1$) : régulateur de pression; ($AR1$) : vanne à soufflet.
- (2) (V_{acc}) : volume d'accumulation; (p_{acc}) : manomètre numérique mesurant la pression au sein du volume d'accumulation; ($Atmo$) : vanne à soufflet pour la mise à la pression atmosphérique; (VE) : vanne à soufflet d'isolement du volume; ($Pt100 - 3$ à 6) : sondes de température associées au volume V_{acc} .
- (3) (PAS) : spectromètre photo-acoustique; (V_{Min} et V_{Mout}) : vannes à soufflet respectivement pour l'entrée et la sortie du spectromètre; (p_{diff}) : manomètre différentiel.
- (4) Système de purge du PAS : ($Reg2$) : régulateur de pression; ($Purge$) : vannes à soufflet.
- (5) Montage de la fuite : ($V1$) : vanne à soufflet; ($Pt100 - 1$) : sonde de température associée à la fuite.
- (6) (V_{ref}) : volume de référence; (p_{ref}) : manomètre numérique mesurant la pression au sein du volume de référence; ($VE0$) : vanne à soufflet d'isolement du volume; ($Pt100 - 2$) : sonde de température associée au volume V_{ref} .

5.1. PRINCIPE DU FLUXMÈTRE INFRAROUGE

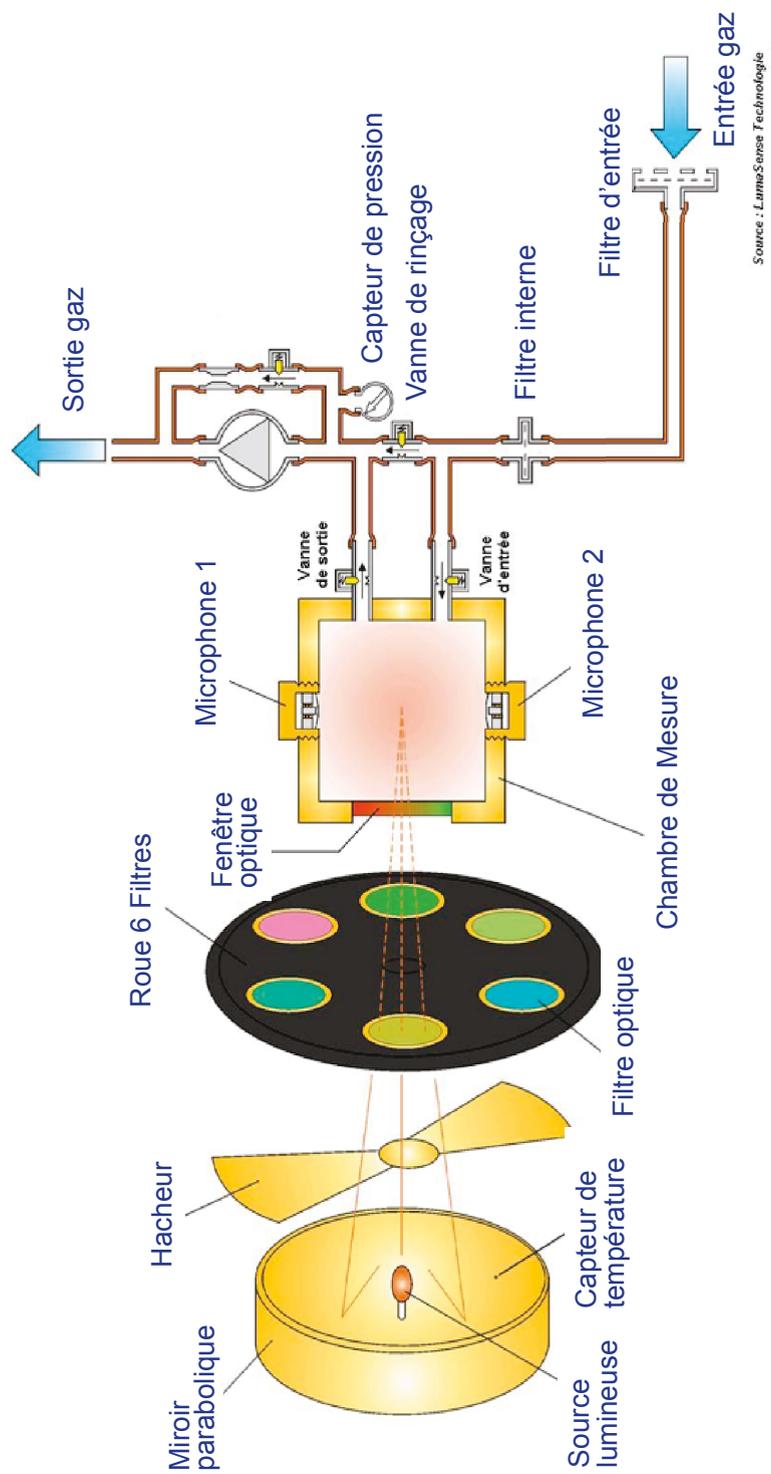


FIGURE 5.2 – Schéma du spectromètre photo-acoustique Innova

pour une concentration nulle afin de déterminer le bruit puis pour une concentration donnée. Ce coefficient est ensuite enregistré dans le PAS qui affichera la réponse directement en unité de concentration.

Bien entendu, pour définir les caractéristiques métrologiques de l'analyseur de gaz, nous devons l'étalonner sur sa gamme d'utilisation qui s'étend de 1 à 150 ppm. Pour ce faire, nous disposons de cinq mélanges gazeux étalons qui permettent de couvrir cette gamme.

5.1.2 Les volumes

La mesure du débit molaire nécessite la connaissance du volume total. Celui-ci est composé non seulement du volume d'accumulation, des volumes des différents raccords et vannes, les volumes internes du PAS et du manomètre numérique mais également du volume propre à la fuite à mesurer. Afin de déterminer le volume total, une méthode par expansion est utilisée (annexe F). Pour ce faire, le fluxmètre infrarouge dispose d'un volume de référence qui est mis sous vide à une pression p_{ref} pour une température T_{ref} alors que le volume d'accumulation est à une pression p_{acc} et une température T_{acc} . À l'ouverture de la vanne $VE0$, une détente adiabatique se produit entre les deux volumes. À l'équilibre, la pression p_e et la température T_e sont mesurés. La conservation de la masse gazeuse ainsi que la loi des gaz parfaits permet d'établir la relation suivante :

$$R = \frac{V_{acc}}{V_{ref}} = \frac{p_e - p_{ref}}{p_{acc} - p_e}. \quad (5.3)$$

Cette méthode permet de déterminer uniquement le volume compris entre les vannes V_{Min} , V_{Mout} , $VE0$, V_1 et $AR1$. En effet, le volume interne du PAS ne peut être intégré car celui est très sensible aux variations de pression, de même pour le volume en amont de la vanne V_1 qui est spécifique aux types de fuite à mesurer. Ces deux volumes sont donc déterminés à l'aide de leurs caractéristiques géométriques.

5.1.3 Caractéristiques actuelles du fluxmètre infrarouge

La capacité du volume d'accumulation ainsi que le choix du PAS ont été dictés par les besoins relatifs à traçabilité des fuites de R-134 pour des débits compris entre 1 et 50 g.an⁻¹. Le PAS a été sélectionné pour ces caractéristiques métrologiques suite à une comparaison avec un spectrophotomètre [8]. Il permet de mesurer des concentrations, pour le R134-a, jusqu'à 1500 ppm, mais la méthode de détection impose d'avoir un nombre minimum de mesures de concentrations ce qui nous réduit à une gamme de détection comprise entre 0,05 et 150 ppm. Le volume d'accumulation a donc été optimisé avec ces deux critères soit une capacité de 2 litres.

Le tableau 5.1 nous donne l'exemple de l'incertitude associée au fluxmètre infrarouge pour la mesure d'un débit de fuite de 20 g · an⁻¹. Plus généralement, il offre la possibilité de mesurer des débits de fuite de 1 à 50 g · an⁻¹ avec une incertitude relative élargie ($k = 2$) de 2 à 4 % suivant le débit mesuré.

TABLE 5.1 – Bilan d'incertitudes du fluxmètre infrarouge

Détermination de l'incertitude associée au fluxmètre infrarouge pour le R134-a				
Composantes	Incetitude type sur la composante	Unité	Coefficient de sensibilité (mol · s⁻¹ · unité⁻¹)	Incetitude type × Q
Mesure de la variation de $\frac{pC}{T}$	$6,6 \cdot 10^{-8}$	$Pa \cdot K$	$7,74 \cdot 10^{-5}$	$5,1 \cdot 10^{-2}$
Volume	$1,5 \cdot 10^{-5}$	m^3	8334	$1,2 \cdot 10^{-1}$
Débit de fuite résiduel	$7,0 \cdot 10^{-4}$	$mol \cdot s^{-1}$	1	$7,0 \cdot 10^{-4}$
Incetitude type (u) en mol · s ⁻¹				$1,7 \cdot 10^{-2}$
Incetitude élargie en mol · s⁻¹ (k=2)				$3,4 \cdot 10^{-2}$

Bien que le fluxmètre infrarouge ait été développé pour répondre aux besoins liés à la mesure de débit de fuite de R134-a, il est possible de mesurer des débits de fuite d'autre gaz absorbant dans l'infrarouge simplement en ajoutant un filtre optique. Un filtre, dont la largeur de bande correspond au pic du spectre d'absorption du CO₂ ($4,3 \mu m \pm 2\%$), avait été installé sur le PAS pour anticiper les besoins qui commencent à apparaître dans le domaine de la réfrigération à l'aide de ce gaz.

Nous allons donc qualifier le fluxmètre pour la mesure de débit de fuite de CO₂.

5.2 Qualification du fluxmètre infrarouge pour le CO₂

Les mesures de débit de fuite de CO₂ et de R-134a reposeraient *à priori* sur la même méthode. En effet, l'utilisation de ces fuites se font dans les mêmes conditions c'est-à-dire à la pression atmosphérique et à une température proche de 20°C. De plus, l'étude des caractéristiques théoriques du PAS pour les mesures de concentration en CO₂ nous montre que la sensibilité ainsi que l'étendue de mesure sont du même ordre de grandeur pour ces deux gaz, ce qui nous permet d'utiliser le même volume d'accumulation. La qualification du fluxmètre impose l'étalonnage du PAS pour le CO₂.

5.2.1 Étalonage du spectromètre photo-acoustique.

Afin de déterminer la capacité du PAS à mesurer la concentration de gaz accumulé dans le volume, il est nécessaire de l'étalonner à l'aide des mélanges gazeux étalons. Pour ce faire, cinq mélanges étalons CO₂-AIR (tableau 5.2) ont été fabriqués par le département *Débitométrie gazeuse et qualité de l'air* du LNE avec des concentrations de 10, 40, 75 et 150 $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$ afin de couvrir la gamme de mesure utilisée.

TABLE 5.2 – Concentrations en CO₂ des mélanges gazeux étalons

Identification	Concentration $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$	Incertitude $\mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$
CO ₂ _AIR_0022	10,523	0,054
CO ₂ _AIR_0021	40,48	0,220
CO ₂ _AIR_0020	74,96	0,370
CO ₂ _AIR_0019	150,79	0,74

Pour chaque mélange, l'indication du PAS est comparée à la concentration étalon. Les premières mesures nous montrent une instabilité du PAS qui se traduit par

une décroissance au cours du temps de l'indication. Cette instabilité est d'autant plus importante que la concentration est basse. Pour une mesure à $10 \mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$, l'indication varie de 15 à $2 \mu\text{mol}\cdot\text{mol}^{-1}$ au bout de 30 mesures soit environ 30 minutes. Selon la notice d'utilisation du PAS[21], il est indiqué que pour la mesure de concentration en CO₂, le gaz doit être humidifié, ce qui explique les instabilités constatées car les mélanges que nous utilisons sont secs.

5.2.1.1 Humidification du gaz.

Nos mélanges sont de très faibles concentrations en CO₂ dans une matrice d'air reconstitué (20% d'oxygène et 80% d'azote) avec un taux d'humidité relative nul. Lors de l'humidification du gaz il est important de veiller à ne pas dépasser un taux d'humidité de 100% (22000 ppm pour de l'air à 20 °C) pour éviter toute condensation, ce qui pourrait endommager l'analyseur de gaz. Pour humidifier le gaz, nous utilisons un tube « Nafion » (tetrafluoroéthylène-fluoropolymère) dont une des propriétés décrites dans l'annexe E est d'être perméable pour les molécules de vapeur d'eau. Ainsi, au niveau de la surface, les molécules d'eau présentes dans l'air ambiant pénètrent à l'intérieur du tube où circule le mélange de CO₂. Le tube fourni par le constructeur présente un diamètre inférieur à 1 mm, ce qui induit une perte de charge de la pression entre l'entrée et la sortie du tube. Pour y remédier, il faut donc augmenter la pression en amont du tube or cela n'est pas réalisable dans la mesure où si la pression indiquée par le manomètre p_{diff} mesurant la différence de pression entre le volume d'accumulation et le PAS est trop importante, les vannes V_{Min} et V_{Mout} se ferment automatiquement par mesure de sécurité. Afin de tenir compte de ces contraintes, nous avons opté pour l'utilisation d'un tube Permapure qui est composé de cinquante tubes Nafion (figure E.2). Le PAS est alors étalonné à l'aide de nos mélanges. Les résultats présentés sur le graphique de la figure 5.5 montrent que les valeurs indiquées par notre PAS présentent des écarts significatifs par rapport aux valeurs des mélanges étalons.

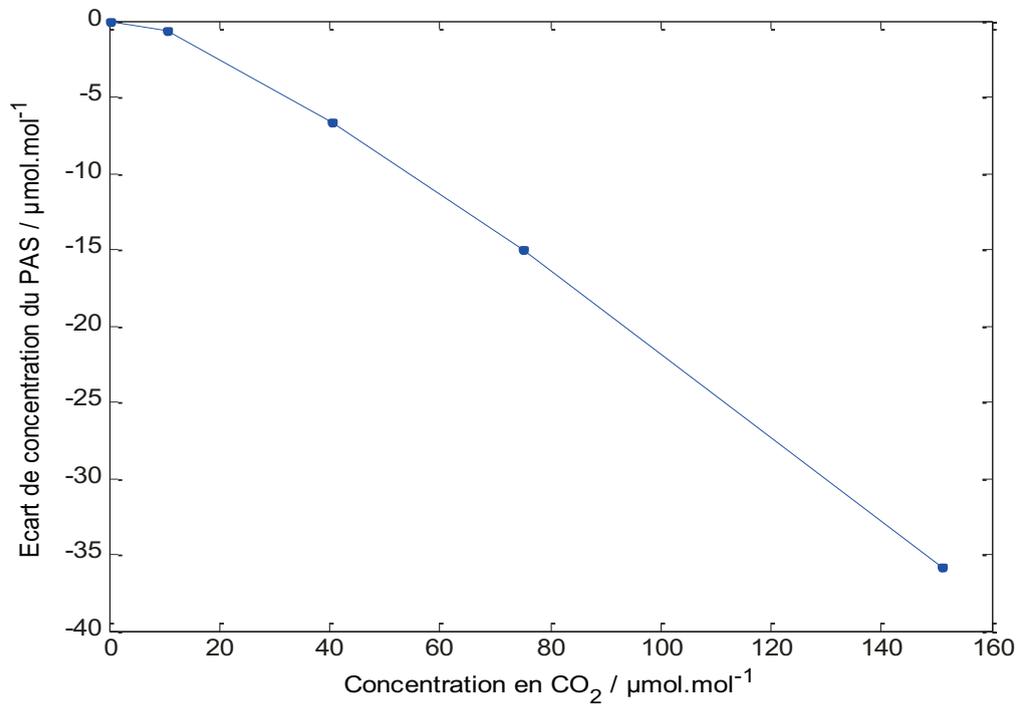


FIGURE 5.3 – Écarts de concentration du PAS

Ces écarts s'expliquent par le fait que le CO₂ est naturellement présent dans l'air ambiant à une concentration de 350 à 450 μmol · mol⁻¹ alors que les concentrations mesurées sont comprises entre 10 et 150 μmol · mol⁻¹. En effet, en analysant le PAS, nous constatons que toute la partie comprise entre la source lumineuse et la cellule de mesure (figure 5.1.1) se trouve dans un environnement où l'air ambiant est présent. Le CO₂ présent absorbe une partie de l'intensité de la source lumineuse en amont de la cellule photo-acoustique et se traduit par une baisse du signal dans cette cellule. De plus, les variations de concentrations de ce gaz entraînent des instabilités au niveau de l'indication du PAS. Pour y remédier, un système de purge a été mis en place afin d'éliminer toute trace de CO₂ atmosphérique au sein du PAS (Figure 5.4).

5.2. QUALIFICATION DU FLUXMÈTRE INFRAROUGE POUR LE CO₂

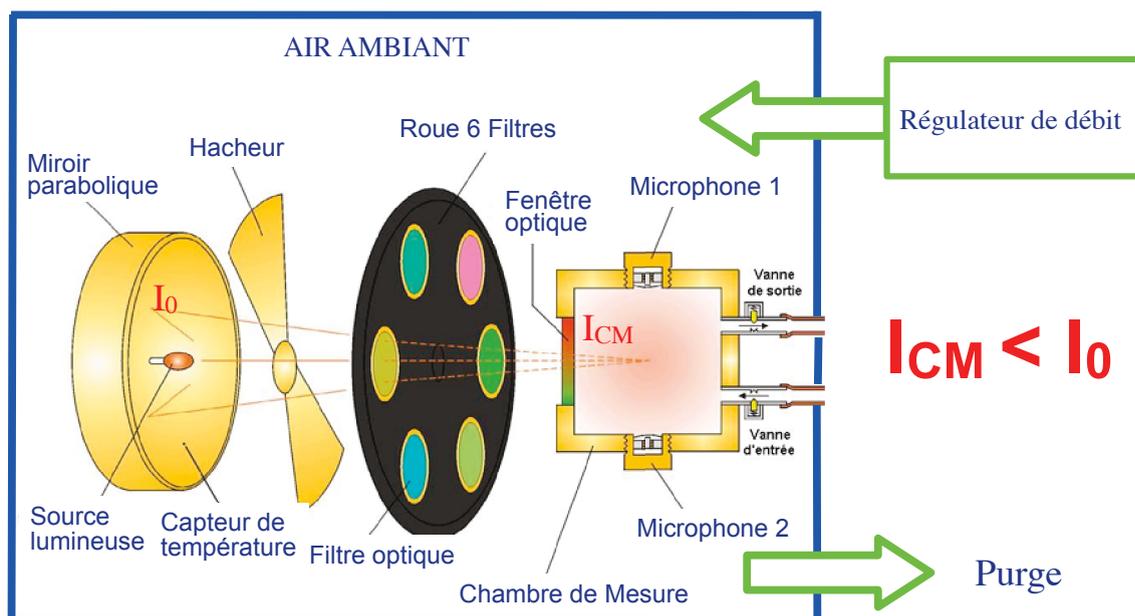


FIGURE 5.4 – Système de purge du spectromètre photo-acoustique
Le CO₂ présent dans l'air ambiant absorbe une partie de la puissance lumineuse issue de la source infrarouge. L'intensité à l'entrée de la chambre de mesure est inférieure à celle au niveau de la source.

Le système de purge permet d'évacuer les molécules de CO₂ en faisant circuler de l'air reconstitué à l'aide d'un régulateur de débit.

5.2.1.2 Le système de purge.

Le PAS dispose en face arrière d'une entrée purge qui permet le rinçage du système de mesure en faisant circuler de l'air reconstitué provenant du régulateur de débit reg_2 . Ce régulateur de marque Sho-Rate permet de générer un débit compris entre 0 et 200 litres normaux par heure c'est-à-dire à 20°C et à la pression atmosphérique (Ln.h^{-1}). Le PAS est étalonné avec des débits de 0, 100 et 200 Ln.h^{-1} . Le graphique de la figure 5.5 nous montre que les écarts d'indication du PAS par rapport aux concentrations étalons diminuent lorsque le débit de rinçage est augmenté. En effet, ces écarts sont deux fois plus faibles pour un débit de rinçage de 200 Ln.h^{-1} . Le PAS ne pouvant supporter un débit de rinçage supérieur, nous nous fixons ce débit maximum comme condition d'utilisation. Les volumes du système de purge ne font pas partie intégrante du volume d'accumulation et ne doivent donc pas être pris en compte. En revanche, l'introduction du tube Nafion en amont du PAS ajoute un volume supplémentaire au volume d'accumulation, son volume doit donc être déterminé.

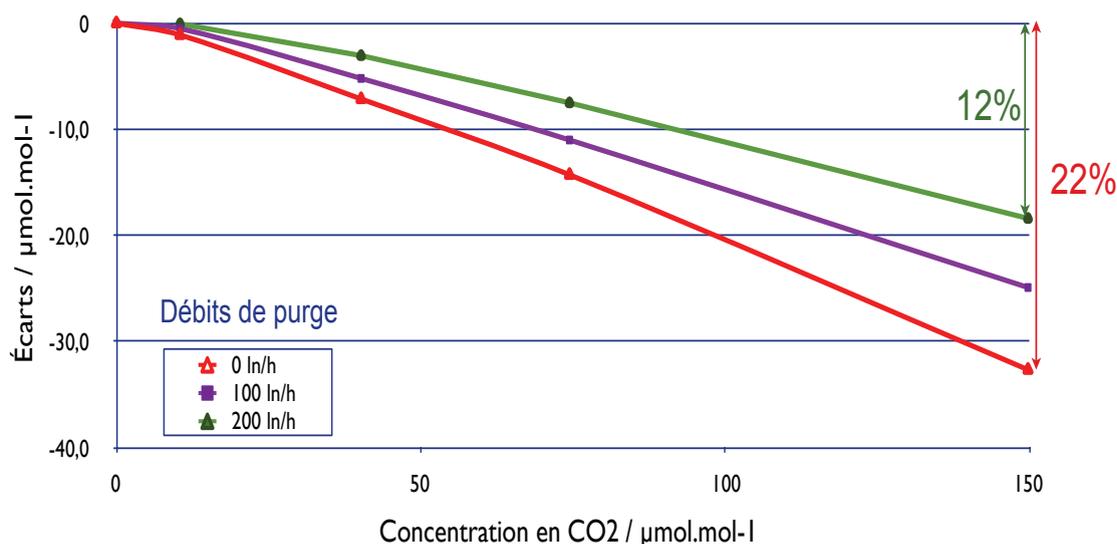


FIGURE 5.5 – Écarts de concentration du spectromètre en fonction du débit de rinçage

5.2.1.3 Résultats de l'étalonnage

Le spectromètre peut maintenant être étalonné. Le mode opératoire consiste à comparer l'indication du PAS à nos mélanges étalons en trois cycles par concentrations croissantes afin de se rapprocher des conditions d'utilisation. Pour chaque concentration, la moyenne des écarts entre les indications et la valeur étalon ainsi que la répétabilité sont déterminées. Ces écarts moyens sont ensuite modélisés à l'aide d'un polynôme de deuxième degré. Le tableau 5.3 présente les résultats d'étalonnage où nous pouvons retenir trois valeurs caractéristiques qui correspondent aux valeurs maximales de l'incertitude de modélisation, des écarts de modélisation et des répétabilités. Ces résultats seront utilisés dans la section 5.3 qui traite de la caractérisation de l'incertitude associée à la mesure de débit de fuite de CO₂.

Concentration de référence $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$	Lecture $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$	Écart-type $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$	Écart moyen $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$	Concentration modélisé $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$	Écart de modélisation $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$	Incertitude de modélisation $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$
10,66	10,39	0,13	-0,27	10,6	-0,050	0,147
39,93	36,35	0,09	-3,58	40,1	0,121	0,098
74,96	66,28	0,15	-8,68	74,9	-0,083	0,131
150,79	128,93	0,70	-21,86	150,8	0,013	0,155
Coefficient du polynôme		Incertitude d'étalonnage en $\mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$				
C ₀	-0,9790	Incertitude de modélisation		0,155		
C ₁	1,1099	Résidus maximum		0,121		
C ₂	$5,224 \cdot 10^{-4}$	Répétabilité		0,702		

TABLE 5.3 – Résultats de l'étalonnage du spectromètre photo-acoustique

5.2.2 Détermination du volume d'accumulation.

Le débit molaire est calculé à partir de la variation temporelle de concentration de gaz issu de la fuite dans le volume d'accumulation qui doit être connu avec la meilleure incertitude. La méthode d'étalonnage par volume d'expansion (annexe F) est utilisée pour déterminer ce volume d'une capacité nominale de 2 litres avec une incertitude élargie relative de l'ordre de 1%. Puisque ce volume peut être équipé de quatre brides différentes en fonction du raccord de la fuite, il doit faire l'objet d'autant d'étalonnages. Étant donné que l'introduction du tube Nafion modifie la

5.3. BUDGET D'INCERTITUDE.

capacité du volume, il faudrait connaître les volumes de toutes les configurations soit au final réaliser huit étalonnages. Afin d'éviter cette contrainte, nous avons décidé de déterminer uniquement le volume additionnel du tube Nafion V_{Naf} que nous ajouterons au volume d'accumulation. La complexité des caractéristiques géométriques du tube ne nous permet pas de calculer son volume avec une incertitude convenable. Deux étalonnages par la méthode d'expansion sont donc effectués, l'un dans la configuration habituelle qui permet de déterminer V_{acc} et l'autre avec le tube nafion déterminant ainsi le volume $V_{accN} = V_{acc} + V_{Naf}$. La différence de capacité correspond au volume de ce tube Nafion. Ce volume V_{Naf} a ainsi été estimé à 17 mL. Nous constatons que cette valeur est inférieure à l'incertitude élargie sur la détermination du volume d'accumulation qui est de 20 mL. Nous verrons dans la section suivante les incertitudes associées à chaque paramètre lors de la mesure d'un débit de fuite de CO_2 .

5.3 Budget d'incertitude.

La mesure de débit de fuite de CO_2 repose sur le même principe que celle de R-134a. Cependant, nous avons vu lors de la qualification que la réponse du PAS pour la mesure de concentration en CO_2 est plus délicate avec notamment l'utilisation d'un système de purge de l'analyseur permettant de limiter l'influence du CO_2 présent dans l'air ambiant. Il convient également de tenir compte du volume additionnel dû à l'introduction du tube Nafion. L'incertitude associée à la mesure de débit de fuite de CO_2 sera donc différente et sera caractérisée au cours de cette section.

5.3.1 Mesure de la température

L'incertitude élargie associée à la mesure de la température du volume provient des étalonnages du multimètre, des sondes de température Pt100 et de l'homogénéité de la température. Elle est estimée à 0,59 K.

5.3.2 Mesure de la pression

Les manomètres numériques utilisés sont étalonnés par comparaison directe avec une balance de pression du département Pression-Vide. L'incertitude élargie sur les pressions mesurées par les manomètres est de $(5 \text{ Pa} + 2,1 \cdot 10^{-5} \times p)$, ce qui est inférieur à 8 Pa sur la gamme de mesure comprise entre 10 kPa et 130 kPa.

5.3.3 Mesure du temps

Le temps de mesure ∂t est déterminé à l'aide de l'horloge de l'ordinateur, l'incertitude type relative associée à cette mesure est inférieure à $1 \cdot 10^{-4}$. Étant donné que l'incertitude recherchée associée à la mesure d'un débit de fuite est de quelques pour-cent, cette incertitude est négligeable.

5.3.4 Mesure de la concentration

L'incertitude sur la mesure de la concentration est estimée à partir non seulement des résultats de l'étalonnage de l'indication du PAS au travers de la répétabilité, de l'incertitude de modélisation mais aussi de l'incertitude d'étalonnage due aux mélanges étalons. Il convient également de tenir compte de la résolution et de l'influence de la température ainsi que la dérive du PAS entre deux étalonnages successifs. Ces différentes composantes sont détaillées dans le tableau 5.4. Une correction non appliquée correspondant au résidus de modélisation est ajoutée à l'incertitude composé élargie. En raison de la difficulté de mesure de concentrations en CO_2 , nous rajoutons à l'incertitude élargie une marge de sécurité. L'incertitude élargie d'utilisation sera donc de $(2,5 + 0,05 \times C) \mu\text{mol} \cdot \text{mol}^{-1}$.

5.3. BUDGET D'INCERTITUDE.

TABLE 5.4 – Incertitude du spectromètre photo-acoustique pour la mesure de concentration en CO₂

Composante	Unité	Incertitude [unité]	Loi	Sensibilité $\mu\text{mol.mol}^{-1} \cdot [\text{unité}]^{-1}$	Incertitude-type $\mu\text{mol.mol}^{-1}$	Incertitude-type $10^{-2} \times C$
Répétabilité	$\mu\text{mol.mol}^{-1}$ $\times C$	0.70 –	1	1	$7,0 \cdot 10^{-1}$	–
Étalonnage	$\mu\text{mol.mol}^{-1}$ $\times C$	$9,0 \cdot 10^{-2}$ $4,1 \cdot 10^{-3}$	2	1	$4,5 \cdot 10^{-2}$	0,21
Résolution	$\times C$	$1,0 \cdot 10^{-2}$	3,5	1	–	0,29
Température	$^{\circ}C$	1,0	1,4	0,01	$7,1 \cdot 10^{-3}$	–
Modélisation	$\mu\text{mol.mol}^{-1}$ $\times C$	$1,6 \cdot 10^{-1}$ –	1	1	$1,6 \cdot 10^{-1}$	–
Stabilité (1an)	$\mu\text{mol.mol}^{-1}$ $\times C$	– $4,1 \cdot 10^{-2}$	2	1	–	2,1
Estimation de l'incertitude-type composée : u_c					0,57	1,8
Estimation de l'incertitude-type composée élargie ($k = 2$) : U_c					1,1	3,5
Correction non appliquée					0,121	–
Incertitude élargie ($k = 2$)					1,3	3,5
Incertitude élargie d'utilisation ($k = 2$)					2,5	5,0

5.3.5 Mesure du volume d'accumulation

Initialement le volume d'accumulation était déterminé en utilisant le volume de référence et la méthode des volumes d'expansion avec une incertitude relative élargie de 1 %. L'introduction du tube Nafion modifie la capacité de ce volume. Comme il l'est dit plus haut (cf. §3.4), nous avons opté pour la détermination de ce volume additionnel afin d'éviter d'avoir à réaliser l'étalonnage de tous les volumes d'accumulation. L'incertitude sur le volume du tube Nafion est donnée par :

$$u_{V_{Naf}} = \sqrt{u_{V_{acc}}^2 + u_{V_{accN}}^2 - 2\rho \cdot u_{V_{acc}} \cdot u_{V_{accN}}}, \quad (5.4)$$

avec ρ le coefficient de corrélation entre les deux déterminations de volume. Puisque les deux mesures sont effectuées dans les mêmes conditions, les erreurs systématiques sont identiques et le coefficient de corrélation est estimé à 0,9. L'incertitude élargie sur le volume du tube est de 9,1 mL. Les volumes d'accumulation, quelque soit la bride installée, ont des incertitudes élargies de 20 mL. Lorsque le

tube Nafion est ajouté pour une mesure en CO_2 , l'incertitude des quatre volumes d'accumulation est alors de 22 mL.

5.3.6 Mesure du débit de fuite de CO_2

Le débit de fuite se calcule à partir des mesures de pressions, de températures et de concentrations acquises toutes les minutes et de la capacité du volume d'accumulation suivant l'expression 5.1. L'incertitude sur la mesure du débit dépend donc de l'incertitude composée de la fonction v^C/T en chaque point d'acquisition. Lors d'un cycle de mesure, cette incertitude est modélisée par la méthode des moindres carrés pondérés. L'incertitude dépend donc non seulement du temps de mesure mais aussi de la valeur du débit de fuite.

Le fluxmètre infrarouge est caractérisé pour la mesure de débit de fuite de CO_2 et fait l'objet d'une comparaison avec le fluxmètre à pression constante pour sa validation métrologique. Les résultats de ces comparaisons sont discutés dans le chapitre suivant.

Chapitre 6

Comparaisons des fluxmètres infrarouge et à pression constante

Le fluxmètre infrarouge à été caractérisé pour la mesure de débit de fuites de CO_2 compris entre $3,5 \cdot 10^{-10}$ et $1,8 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ ($0,5$ à $25 \text{ g} \cdot \text{an}^{-1}$) et le fluxmètre gazeux à pression constante pour des débits de tout type de gaz compris entre $4,1 \cdot 10^{-10}$ et $8,2 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$. Afin d'effectuer les validations métrologiques de ces instruments, il est nécessaire d'effectuer des comparaisons à partir de la référence pour la mesure de débit de fuite que constitue le fluxmètre infrarouge dans la configuration d'une mesure de fuite de R-134a . Pour ce faire, nous utiliserons une fuite à réservoir ainsi que deux fuites capillaires de transfert sans réservoir. Un de ces deux derniers artéfacts offre l'avantage d'avoir fait l'objet, dans le cadre du projet de recherche EURAMET P911, d'un étalonnage au laboratoire national de métrologie italien (INRIM) qui dispose d'un fluxmètre à pression constante dont la gamme de mesure et le principe de fonctionnement sont identiques au nôtre. Ces mesures ont été effectuées avec du R-134a et de l'hélium sous vide et à la pression atmosphérique. Il nous est ainsi possible de comparer nos mesures de débits référencés à la pression atmosphérique pour un gaz autre que le R-134a pour lesquels nous ne disposons d'aucun étalon.

La première étape consiste à comparer le fluxmètre gazeux à notre référence pour la mesure de débit de fuite de R-134a à l'aide de la fuite à réservoir sur la gamme de mesure du fluxmètre infrarouge. Ensuite, nous utiliserons les fuites capillaires

sans réservoir identifiées F et K pour des mesures de fuites sur toute la gamme du fluxmètre gazeux et pour différents gaz tel que l'hélium, le CO₂ et le R-134a. Nous terminerons ces comparaisons par des mesures de fuites de CO₂ avec le fluxmètre infrarouge à l'aide de la fuite K.

6.1 Fuite à réservoir de R-134a

Le département *pression-vide* vient d'acquérir une fuite à réservoir réglable de marque « Vacuum Technology Inc. » type RLS (figure A.2). Celle-ci est composée d'un réservoir contenant le R-134a et d'un volume tampon de réglage. L'ouverture de la vanne entre ces deux éléments permet de transférer une quantité de gaz dans le but d'avoir, dans le volume tampon, une pression pouvant atteindre 60 psi¹, indiquée par un manomètre à aiguille. Un capillaire pincé, placé à la sortie du volume tampon, fait office d'élément de fuite. En sortie, il est possible de délivrer des débits en R-134a entre $1 \cdot 10^{-10}$ et $4 \cdot 10^{-9}$ mol · s⁻¹ en ajustant la pression en amont de la fuite entre 5 et 60 psi. Afin de couvrir la gamme commune de mesure des deux fluxmètres, des mesures ont été effectuées pour les paliers 15, 25, 35, 45 et 55 psi. Les tableaux 6.1 et 6.2 présentent les résultats obtenus où, pour chaque palier, le débit molaire mesurés Q_m est ramené à un débit à 20 °C équivalent $Q_m(20)$ à l'aide de la relation suivante [22][23] :

$$Q_m(20) = \frac{Q_m}{1 + \alpha(T - 20)}, \quad (6.1)$$

où T est la température de la fuite lors de la mesure et α le coefficient de température spécifique de la fuite fourni par le constructeur ($-0,2\% \cdot K^{-1}$).

Pour chaque fluxmètre, le débit est modélisé en fonction de la différence de pression Δp à l'aide d'un polynôme de degré 2. Les incertitudes élargies sur les débits modélisés tiennent compte de la répétabilité, de l'incertitude associée aux fluxmètres, de l'écart au modèle, de la température ainsi que de la différence de

1. Le psi (pound per square inch) est une unité de pression anglo-saxone. L'unité SI est le Pa avec : 1psi = 6894,76 Pa

6.1. FUIITE À RÉSERVOIR DE R-134A

pression.

TABLE 6.1 – Résultats d'étalonnage obtenus avec le fluxmètre gazeux

Δp psi	Q_m $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	$Q_m(20^\circ\text{C})$ $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	Écart-type $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	Q_{mod} $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	Écart au modèle %	$U_{Q_{\text{mod}}}(\mathbf{k} = 2)$ %
25	1,086	1,086	0,0048	1,093	0,64	8,7
35	1,815	1,815	0,018	1,794	-1,17	6,0
45	2,598	2,596	0,028	2,618	0,80	4,5
55	3,573	3,572	0,040	3,567	-0,15	3,5

TABLE 6.2 – Résultats d'étalonnage obtenus avec le fluxmètre infrarouge

Δp psi	Q_m $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	$Q_m(20^\circ\text{C})$ $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	Écart-type $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	Q_{mod} $\times 10^{-9}$ mol.s $^{-1}$	Écart au modèle %	$U_{Q_{\text{mod}}}(\mathbf{k} = 2)$ %
15	0,500	0,500	0,0025	5,029	-0,55	5,5
25	1,036	1,035	0,0029	1,029	0,61	4,0
35	1,716	1,716	0,0030	1,718	-0,13	3,5
45	2,564	2,565	0,0057	2,568	-0,13	3,4
55	3,582	3,583	0,016	3,581	0,06	3,1

Pour mieux interpréter ces résultats, nous utiliserons des outils de comparaisons inter laboratoires [24]. En plus de ces deux séries de mesures, nous inclurons également les données du certificat d'étalonnage de la fuite établi par le constructeur qui présente une incertitude relative élargie de 7,0 % en tout point. Pour chaque pression Δp , un débit de référence Q_{ref} est calculé à partir de la moyenne pondérée par l'inverse des variances V_Q :

$$Q_{ref} = \sum \frac{Q_{mod}(i)}{V_Q(i)} \times \frac{1}{\sum V_Q(i)}, \quad (6.2)$$

avec i l'indice de la série de mesure. Ainsi, pour le calcul de ces valeurs de référence, un poids plus important est donné aux valeurs dont l'incertitude est plus petite. L'incertitude élargie pour chaque valeur de référence est donnée par :

$$U_{Q_{ref}} = \sqrt{\frac{1}{\sum \frac{1}{U_Q^2(i)}}}. \quad (6.3)$$

6.1. FUIITE À RÉSERVOIR DE R-134A

Pour chaque point des trois séries considérées, les écarts relatifs par rapport à la valeur de référence sont déterminés :

$$D_i = \frac{Q_{mod}(i) - Q_{ref}}{Q_{ref}}. \quad (6.4)$$

Le graphique de la figure 6.1 nous montre les écarts relatifs par rapport à la valeur de référence. En abscisse, les séries de mesures sont légèrement décalées pour des raisons de lisibilité du graphique. Les incertitudes élargies ($k = 2$) sont représentées par les barres verticales. Nous constatons que les résultats sont cohérents avec un écart maximum inférieur à 5%. Afin de confirmer cette cohérence, nous calculons les erreurs normalisées E_N à partir de la relation suivantes :

$$E_N = \frac{D_i}{\sqrt{U_{Q_{ref}}^2 + U_{Q_{mod}}^2(i)}}. \quad (6.5)$$

Comme on peut le constater sur la figure 6.2, les valeurs absolues des écarts normalisés sont tous inférieures à 1, ce qui nous permet de conclure que les résultats sont très satisfaisants.

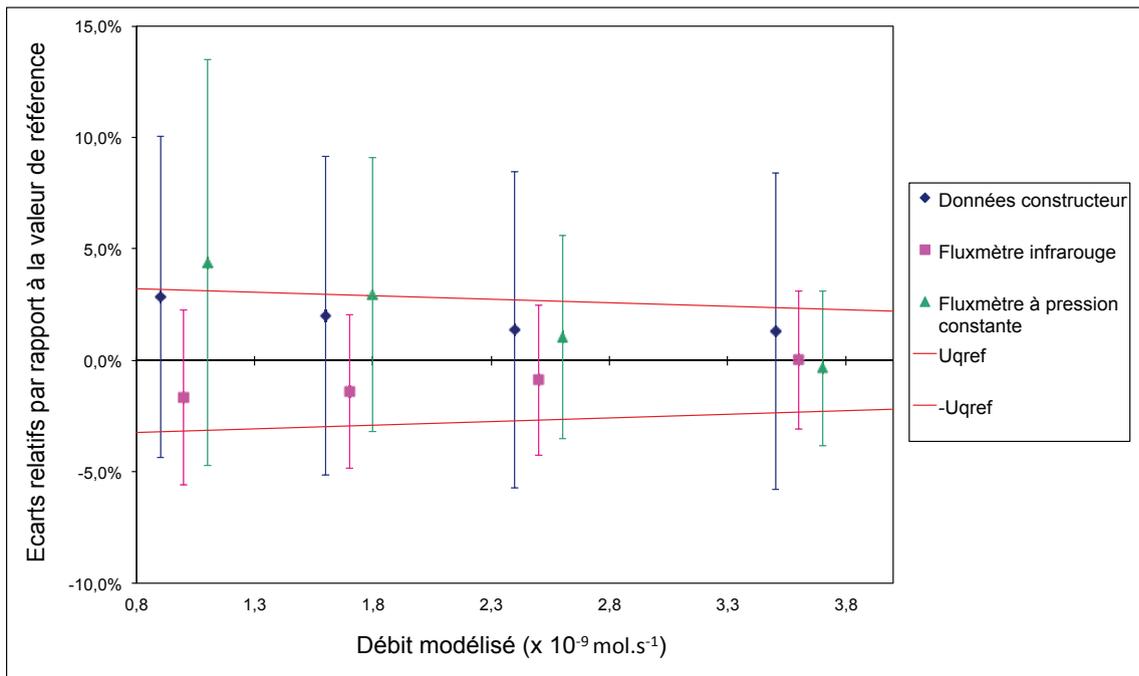


FIGURE 6.1 – Résultats de la comparaison de la fuite à réservoir

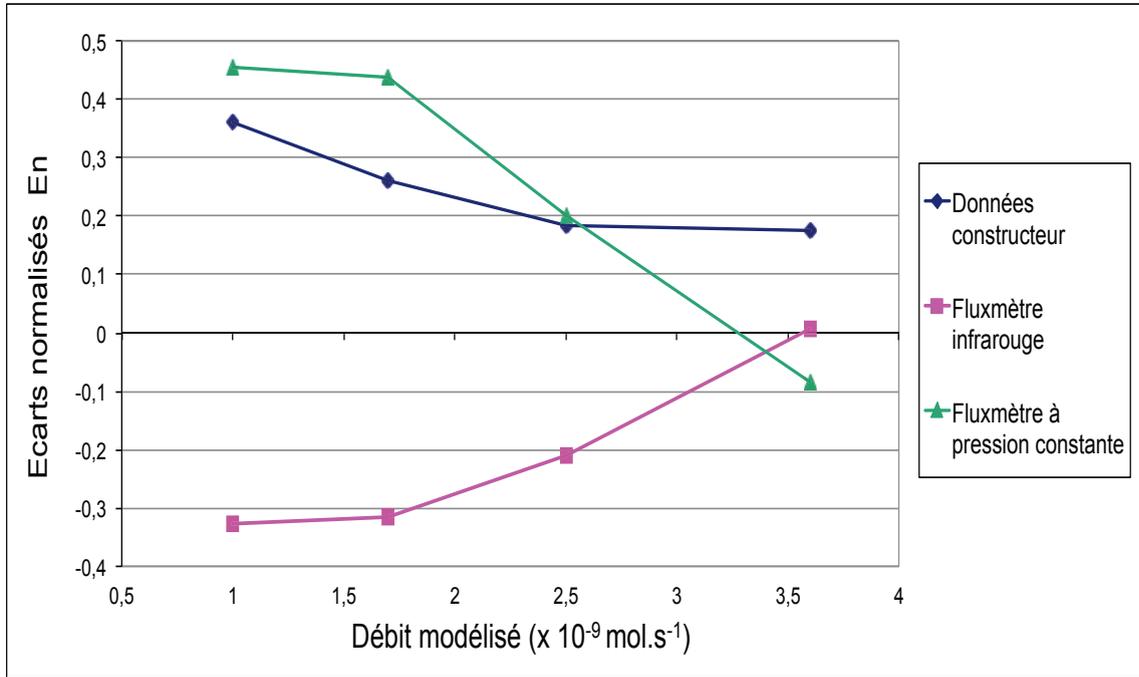


FIGURE 6.2 – Écarts normalisés pour la fuite à réservoir

6.2 La fuite F

La fuite à réservoir précédemment utilisée ne fonctionne qu'avec le gaz de son réservoir, en l'occurrence du R-134a, et ne concerne que la partie basse de la gamme de mesure du fluxmètre à pression constante. Pour approfondir la validation métrologique de ce fluxmètre, nous avons utilisé une autre fuite capillaire de marque Leybold identifiée « FUI F » dont le fonctionnement consiste à appliquer une pression en amont de la fuite à l'aide d'un générateur de pression lui-même alimenté par le gaz à étudier. La valeur nominale de cette fuite est de $3,1 \cdot 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ pour un écoulement sous vide et avec une pression amont en hélium de 1 bar. La méthode de comparaison est identique à celle utilisée pour la fuite à réservoir. Il est important de noter que, contrairement à la fuite à réservoir où le réglage de la pression se fait à l'aide de l'indication lue sur un manomètre à aiguille, la fuite F offre la possibilité d'un réglage plus fin, sachant que le générateur en amont est étalonné en pression au sein du département Pression-Vide avec une incertitude élargie de l'ordre de 50 Pa alors que l'indication du manomètre de la fuite à réservoir présente une incerti-

tude de 1400 Pa. La valeur de la différence de pression Δp est connue avec plus de justesse, ce qui se traduit par une répétabilité deux fois plus faible.

6.2.1 Mesure de débits d'hélium

Pour l'hélium, la gamme de mesure de la fuite F s'étend sur deux décades soit entre $1 \cdot 10^{-7}$ et $1 \cdot 10^{-9}$ mol \cdot s $^{-1}$. Cette fuite est alimentée par un générateur de pression absolue de marque « Druck DPI 515 » dont la pression délivrée est comprise entre 120 et 370 kPa. Étant donné que l'écoulement se fait à la pression atmosphérique, ceci correspond à une différence de pression comprise entre 20 et 270 kPa. Les figures 6.3 et 6.4 montrent la cohérence des résultats obtenus. Toutefois, même si les écarts normalisés sont inférieurs à 1, il y a un décalage entre les deux séries de mesures. Avant de nous y intéresser, nous allons étudier les mesures avec le R-134a afin de vérifier si ces écarts subsistent.

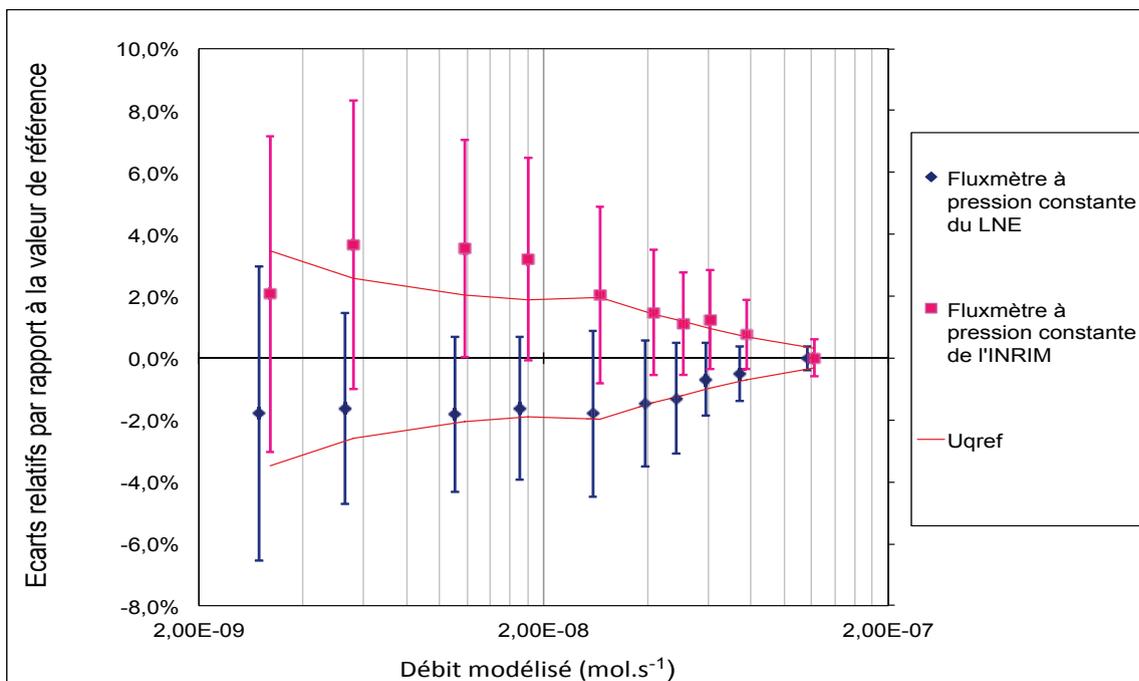


FIGURE 6.3 – Résultats de la comparaison pour la fuite F alimentée en hélium

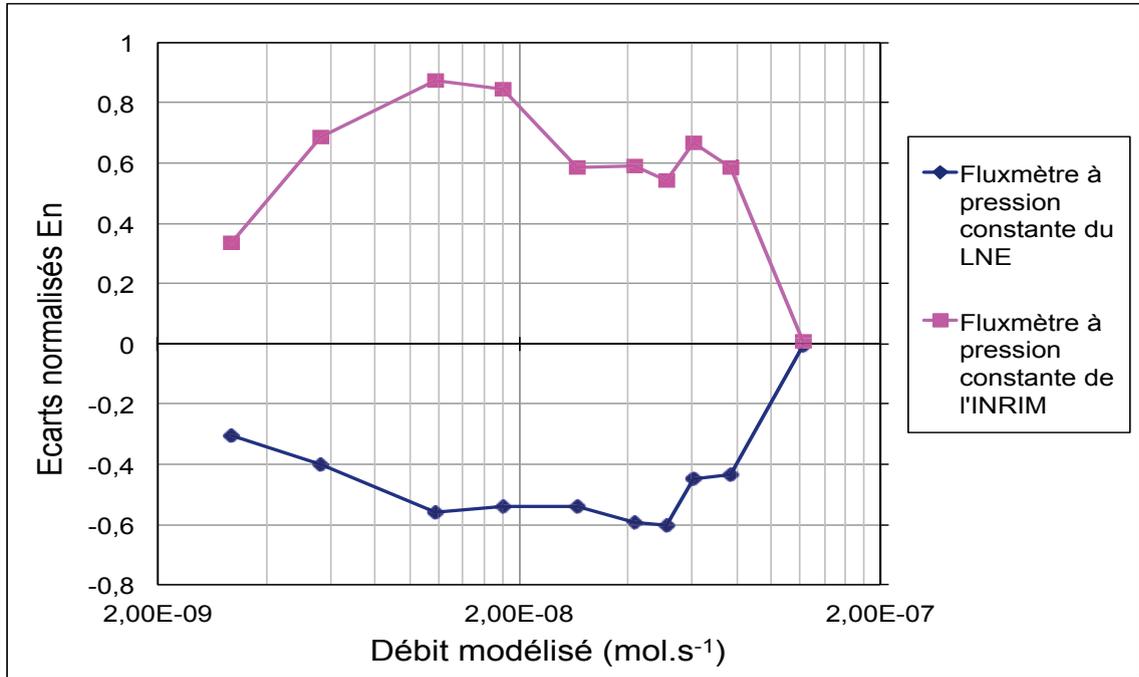


FIGURE 6.4 – Écarts normalisés pour la fuite F alimentée en hélium

6.2.2 Mesure de débits de R-134a

La comparaison s'effectue sur la même étendue de mesure que pour l'hélium pour les deux fluxmètres gazeux à pression constante (LNE et INRIM). Des mesures à l'aide du fluxmètre infrarouge sont réalisées pour des pressions en amont inférieures à 150 kPa. L'utilisation du R134a pur nécessite quelques précautions car la pression de vapeur de ce gaz est de 470 kPa [25]. Or la bouteille de gaz est à une pression supérieure, ce qui signifie que le composé se trouve en phase liquide. Afin d'éviter d'endommager le générateur de pression, il est indispensable que le composé soit en phase gazeuse. Nous avons opté pour un volume tampon de deux litres entre le manodétendeur de la bouteille et le générateur pour assurer la détente du gaz. Les graphiques des figures 6.5 et 6.6 présentent les résultats de cette comparaison qui montrent des écarts inférieurs à 2%, mis à part pour le premier point qui présente un écart de 5% mais qui reste tout de même dans les incertitudes.

6.2. LA FUITE F

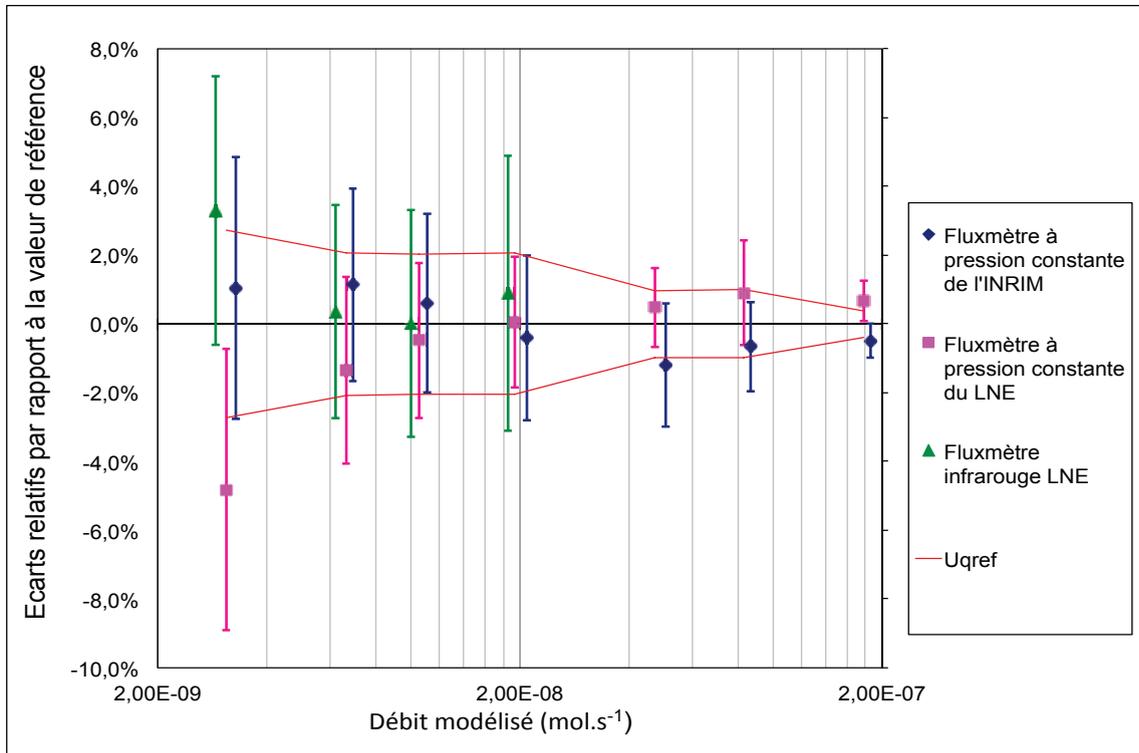


FIGURE 6.5 – Résultats de la comparaison pour la fuite F alimentée en R-134a

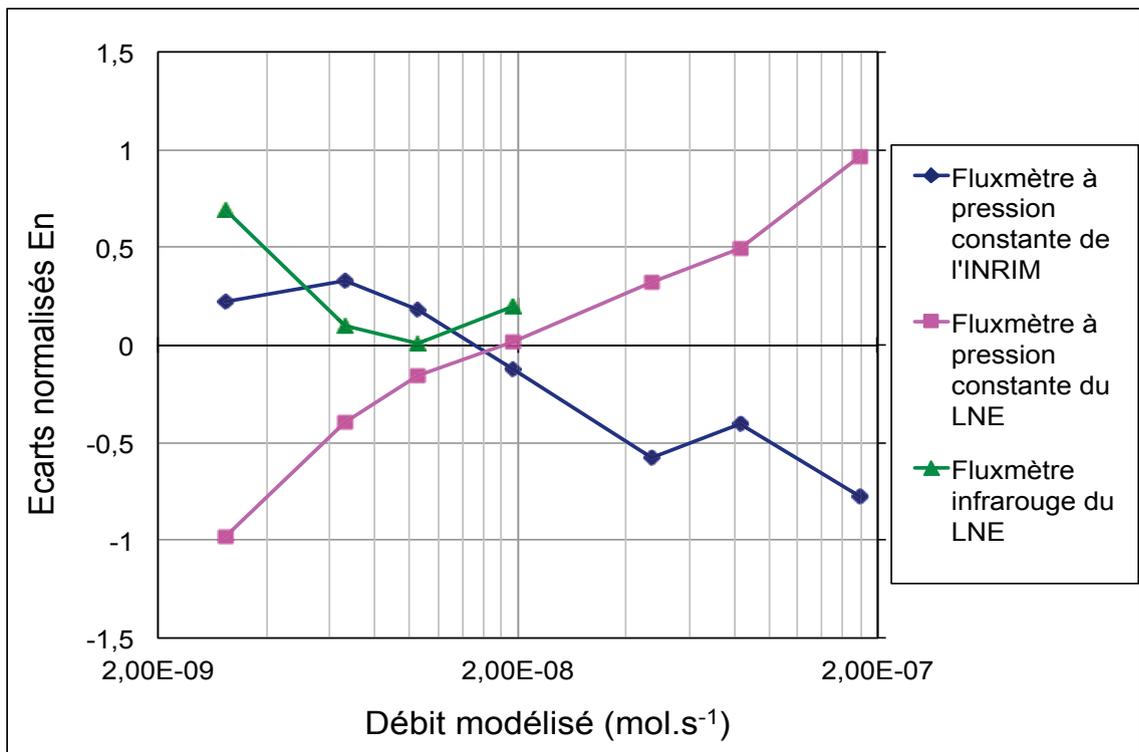


FIGURE 6.6 – Écart normalisés pour la fuite F alimentée en R-134a

Les comparaisons effectuées avec la fuite F nous montrent que les résultats de notre fluxmètre gazeux à pression constante sont cohérents. Cependant, quelques points doivent d'être abordés, comme le décalage constaté entre les mesures effectuées par l'INRIM et le LNE, mais aussi le fait que les répétabilités pour le R-134a soient meilleures que pour l'hélium. En effet, si l'on s'intéresse au débit de la fuite pour une différence de pression donnée, on constate d'après le graphique de la figure 6.7 que le débit est plus important pour le R-134a que pour l'hélium, ce qui implique une meilleure répétabilité donc une incertitude plus faible. Cette différence de débit est due aux propriétés de l'écoulement d'un gaz dans un capillaire. Le flux gazeux exprimé en $\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ est calculé à partir de la relation A.2 :

$$Q_{pv} = C \times \Delta p, \quad (6.6)$$

où C est la conductance de la fuite en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ qui dépend du régime d'écoulement ainsi que de la nature du gaz [22]. Pour un écoulement en régime visqueux, cette conductance est donnée par l'équation de Poiseuille [6] :

$$C_v = \frac{\pi r^4}{8\eta l} \cdot pa, \quad (6.7)$$

où r et l sont respectivement le rayon et la longueur du capillaire, pa est la pression moyenne dans ce capillaire et η la viscosité du fluide le traversant. Cette viscosité est plus importante pour l'hélium que pour le R-134a et se traduit au vu de la relation précédente par un débit plus faible pour l'hélium.

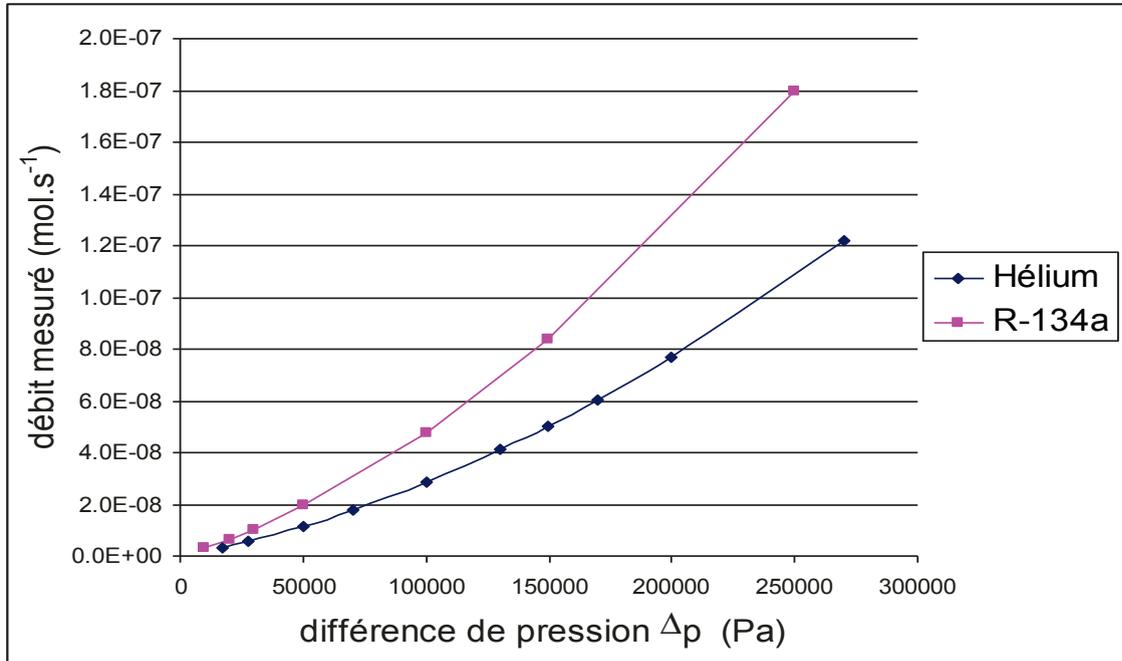


FIGURE 6.7 – Débit mesuré par le fluxmètre à pression constante pour l'hélium et le R-134a

Nous constatons également que la valeur de débit d'hélium vers la pression atmosphérique est différente de la valeur nominale car celle-ci est donnée pour un écoulement sous vide où le régime est proche moléculaire avec une conductance C_m donnée par :

$$C_m = \frac{2\pi r^3}{3l} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M}}, \quad (6.8)$$

avec R la constante des gaz parfaits, T la température thermodynamique et M la masse molaire du gaz. Ici la conductance et donc le débit ne dépend plus de la viscosité mais uniquement de la masse molaire du gaz (cf §.2.4).

Les décalages constatés sont dus au fait que la reproductibilité de la fuite se dégrade considérablement lorsque la pression d'alimentation est inférieure à 200 kPa. En effet, la modélisation de la fuite sur deux décades nous donne des écarts au modèle d'autant plus importants que les débits sont faibles. Or si nous effectuons deux modélisations, une pour les différences de pression inférieures à 100 kPa et une autre pour les différences supérieures, nous constatons que les écarts par rapport à

la valeur de référence sont légèrement inférieurs pour un Δp supérieur à 100 kPa mais plus importantes en dessous. Cela est dû au fait que la fuite n'est pas dans les conditions optimales d'utilisation lorsque la différence de pression est inférieure à 100 kPa, malheureusement ces pressions correspondent à la zone de recoupement de nos deux fluxmètres. Nous allons donc utiliser une autre fuite identifiée K dont la valeur nominale de débit est 100 fois inférieure à celle de la fuite F.

6.3 La fuite K

La fuite identifiée K est un capillaire de marque Leybold de débit nominal de $4,5 \cdot 10^{-7} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ pour un écoulement sous vide et une pression amont en hélium de 1 bar. Avec une pression en amont variant de 200 à 400 kPa, il est possible de générer des débits de fuites de R-134a compris entre $4,5 \cdot 10^{-10} \text{ mol}\cdot\text{s}^{-1}$ et $2,6 \cdot 10^{-9} \text{ mol}\cdot\text{s}^{-1}$. Cette fuite est donc la plus adéquate pour effectuer des comparaisons dans la gamme de mesure basse du fluxmètre gazeux dans l'optique de confirmer les résultats précédents avec le R-134a mais surtout de valider les mesures de débit de fuite de CO_2 mesurés par le fluxmètre infrarouge.

6.3.1 Mesure de débits de R-134a

Même si la fuite K peut être alimentée avec une pression en amont pouvant atteindre 700 kPa nous limiterons la pression à 400 kPa afin que le R-134a reste en phase gazeuse. Dans cette comparaison, nous effectuerons trois points de mesure avec des différences de pression Δp de 100, 200 et 300 kPa. Le fait de n'avoir qu'un nombre limité de mesures nous conduit à aborder cette comparaison de manière différente car une modélisation n'est pas appropriée dans ce cas. Les résultats de mesure seront ramenés à des Δp de référence de 100, 200 et 300 kPa en utilisant de la relation 6.9 dans l'hypothèse où la conductance est fixe pour une variation de Δp très faible :

$$Q_{\Delta p} = Q_m \frac{\Delta p}{\Delta p_m}, \quad (6.9)$$

où Δp_m est la différence de pression lors de la mesure. Les résultats d'étalonnage sont reportés dans les tableaux 6.3 et 6.4. Nous constatons que les répétabilités sont très faibles pour ce type de fuite lorsque la pression d'alimentation est supérieure à 100 kPa.

TABLE 6.3 – Résultats obtenus à l'aide du fluxmètre infrarouge pour la fuite K alimentée en R-134a

Δp_m	Q_m	Δp	$Q_{\Delta p}$	Écart-type	$U_{Q_{\Delta p}}(k = 2)$
kPa	$\times 10^{-9} \text{ mol.s}^{-1}$	kPa	$\times 10^{-9} \text{ mol.s}^{-1}$	%	%
98, 9937	0, 4787	100	0, 4835	0, 57	6, 0
197, 6630	1, 131	200	1, 326	0, 14	3, 7
298, 2547	2, 534	300	2, 609	0, 26	3, 5

TABLE 6.4 – Résultats obtenus à l'aide du fluxmètre gazeux pour la fuite K alimentée en R-134a

Δp_m	Q_m	Δp	$Q_{\Delta p}$	Écart-type	$U_{Q_{\Delta p}}(k = 2)$
kPa	$\times 10^{-9} \text{ mol.s}^{-1}$	kPa	$\times 10^{-9} \text{ mol.s}^{-1}$	%	%
98, 8080	0, 4885	100	0, 4944	0, 33	19
199, 0239	1, 366	200	1, 372	0, 61	6, 9
299, 0259	2, 609	300	2, 617	0, 04	3, 6

Le graphique de la figure 6.8 présente le débit mesuré par les deux fluxmètres pour les trois différences de pression. Les incertitudes élargies sont représentées par les barres verticales. Les écarts entre les deux fluxmètres sont inférieurs à 4%, ce qui est très convenable par rapport aux incertitudes. Si pour les points à 200 et 300 kPa les incertitudes sont du même ordre de grandeur, il n'en est pas de même pour le point de mesure à 100 kPa où le fluxmètre gazeux à pression constante présente une incertitude élargie de 19% liée au talon de cette incertitude.

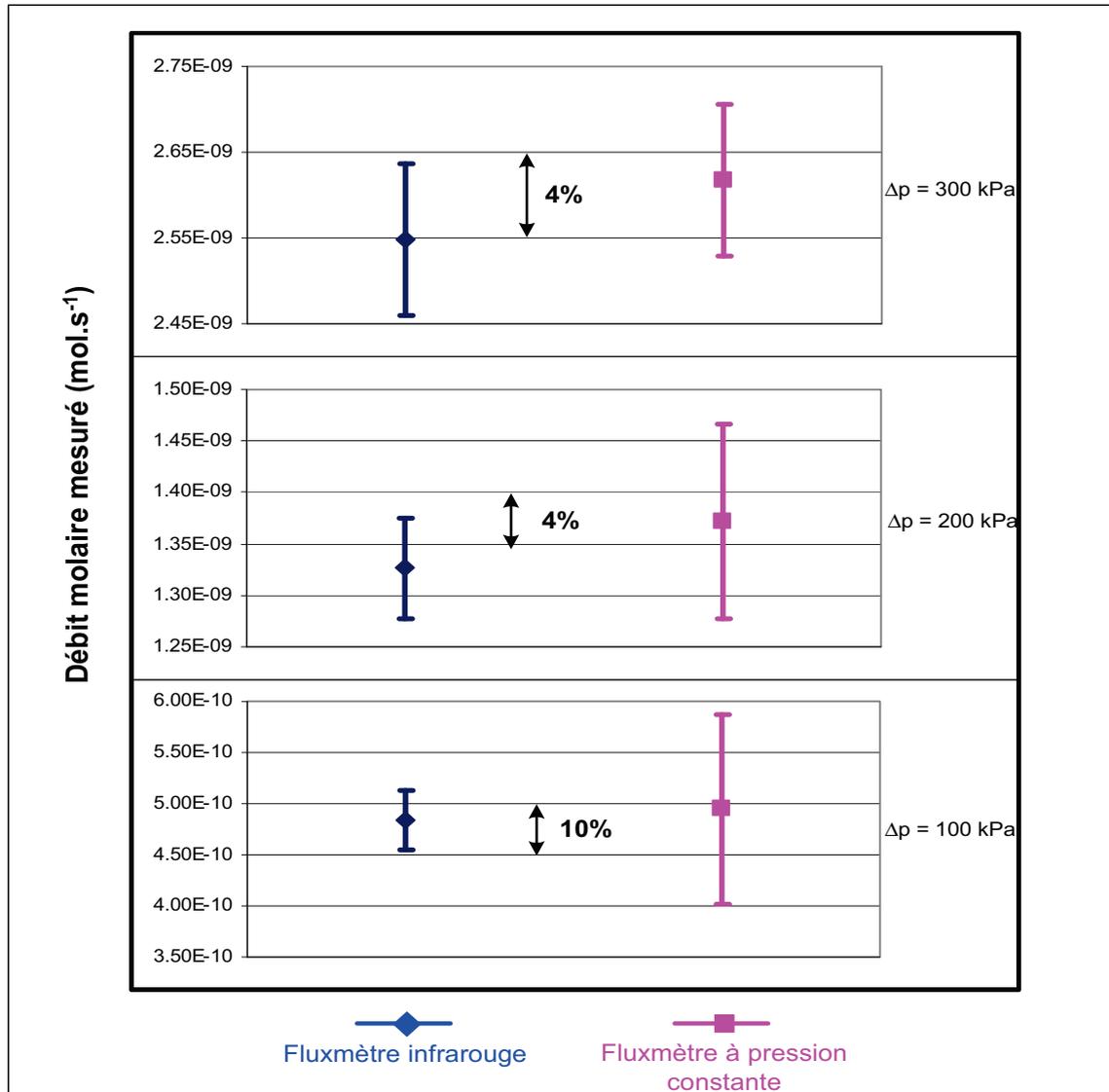


FIGURE 6.8 – Résultats de la comparaison pour la fuite K alimentée en R-134a

6.3.2 Mesure de débits de CO₂

La mesure de débit de CO₂ n'avait jamais été réalisée auparavant par le LNE. Maintenant que le fluxmètre infrarouge a été caractérisé pour ce gaz, il doit faire l'objet d'une comparaison avec le fluxmètre gazeux à pression constante pour lequel les résultats précédents montrent sa capacité à mesurer des débits gazeux sur cette gamme de mesure. La fuite la plus adéquate est la fuite K qui pourra être alimentée avec une pression en amont de 700 kPa. La méthode de comparaison est identique

à celle appliquée pour le R-134a.

Les résultats de cette comparaison sont présentés sur la figure 6.9 où l'on constate que, contrairement au R-134a, les résultats fournis par les deux fluxmètres ne sont pas du tout en concordance. En effet, les écarts sont compris entre 11% et 27% ce qui est nettement au dessus de l'incertitude maximale associée au fluxmètre infrarouge qui est de 8%. D'autres mesures, effectuées sur le fluxmètre infrarouge pour une pression en amont de 700 kPa, montrent cette fois un débit mesuré de $7,9 \cdot 10^{-9} \text{ mol.s}^{-1}$ soit des écarts de 10% et 20% par rapport respectivement à la mesure précédente et au fluxmètre gazeux à pression constante. Ces écarts sont attribués au PAS qui ne peut mesurer le CO_2 avec une bonne reproductibilité malgré le système de purge. Manifestement, le fluxmètre infrarouge n'est pas adapté à la mesure de débits de fuite de CO_2 dans cette gamme de mesure.

6.3. LA FUITE K

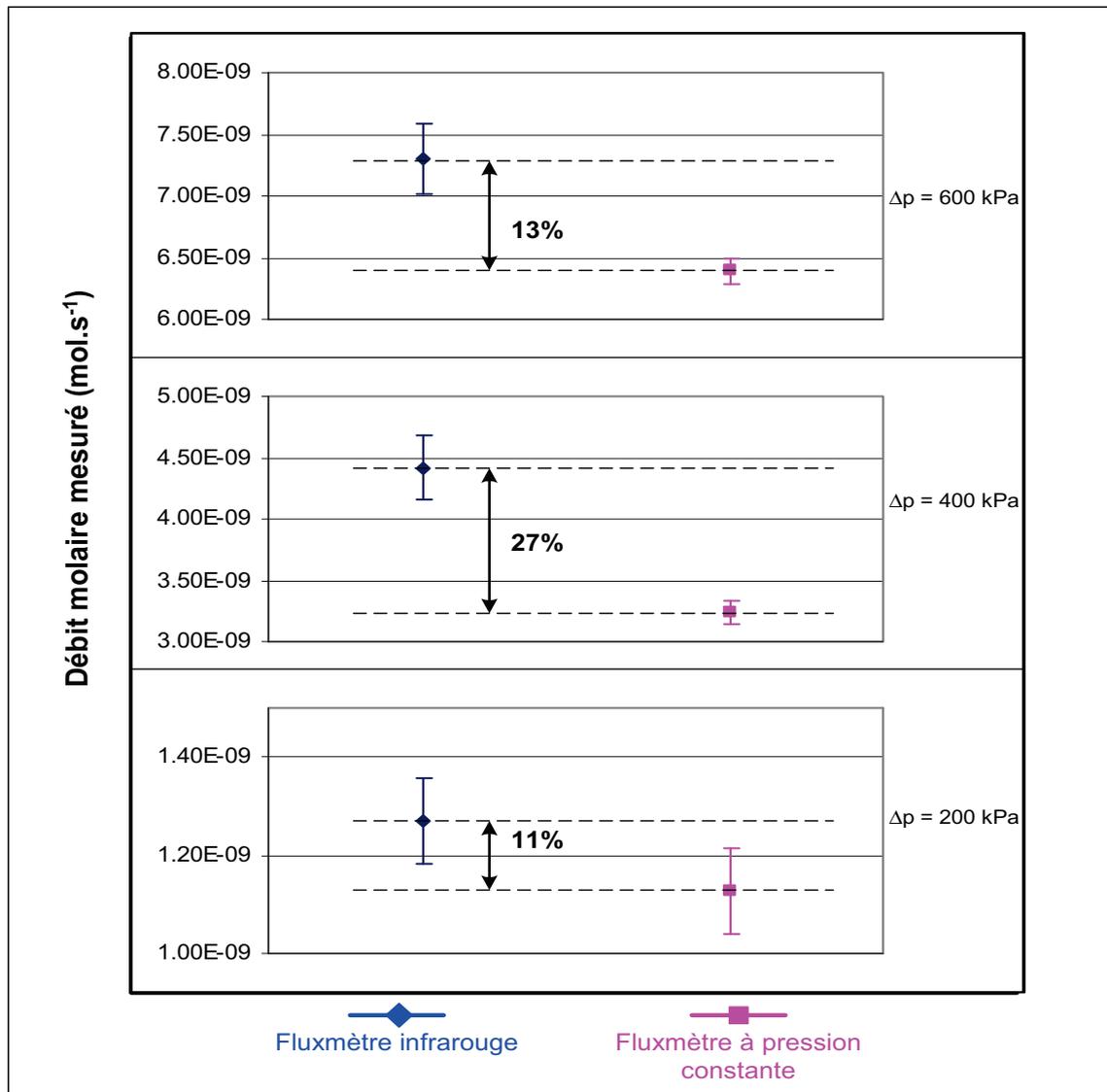


FIGURE 6.9 – Résultats de la comparaison pour la fuite K alimentée en CO₂

Chapitre 7

Perspectives

La mesure de débits offre bon nombre de perspectives. En effet, il est possible de poursuivre l'amélioration des deux fluxmètres avec d'une part la diminution de l'incertitude pour les débits inférieurs à $3 \cdot 10^{-9} \text{mol} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le fluxmètre gazeux à pression constante et d'autre part l'extension du fluxmètre infrarouge à d'autres gaz absorbant dans l'infrarouge. De plus, il serait intéressant d'étendre les comparaisons sur toute la gamme de mesure. Le dernier point concerne la possibilité des mesurages avec différents gaz, ce qui permettrait de confronter l'étude théorique de l'écoulement dans une fuite avec des données expérimentales.

7.1 Le fluxmètre gazeux à pression constante

Au cours de ce mémoire, nous avons caractérisé ce fluxmètre pour des débits référencés à la pression atmosphérique. Cependant, l'incertitude est entachée d'un talon correspondant aux flux parasites Q_{th} et Q_{pe} qui nous pénalisent pour la mesure de débits inférieurs à $3 \cdot 10^{-9} \text{mol} \cdot \text{s}^{-1}$. Afin d'en limiter la contribution, il est nécessaire de diminuer l'incertitude sur la correction du flux issue des passages étanches. En effet, lors de la caractérisation de ce flux, nous avons constaté que cette incertitude était égale à la correction appliquée (cf. § 4.3.6) car ce flux présentait une dispersion importante. Il serait donc préférable de déterminer une correction pour chaque mesure au lieu d'appliquer une correction systématique. Pour cela, l'idée est de placer une vanne à trois voies entre la fuite à mesurer et le fluxmètre comme représenté sur

7.1. LE FLUXMÈTRE GAZEUX À PRESSION CONSTANTE

la figure 7.1. Dans ces conditions, la fuite débite soit à la pression atmosphérique soit dans le fluxmètre.

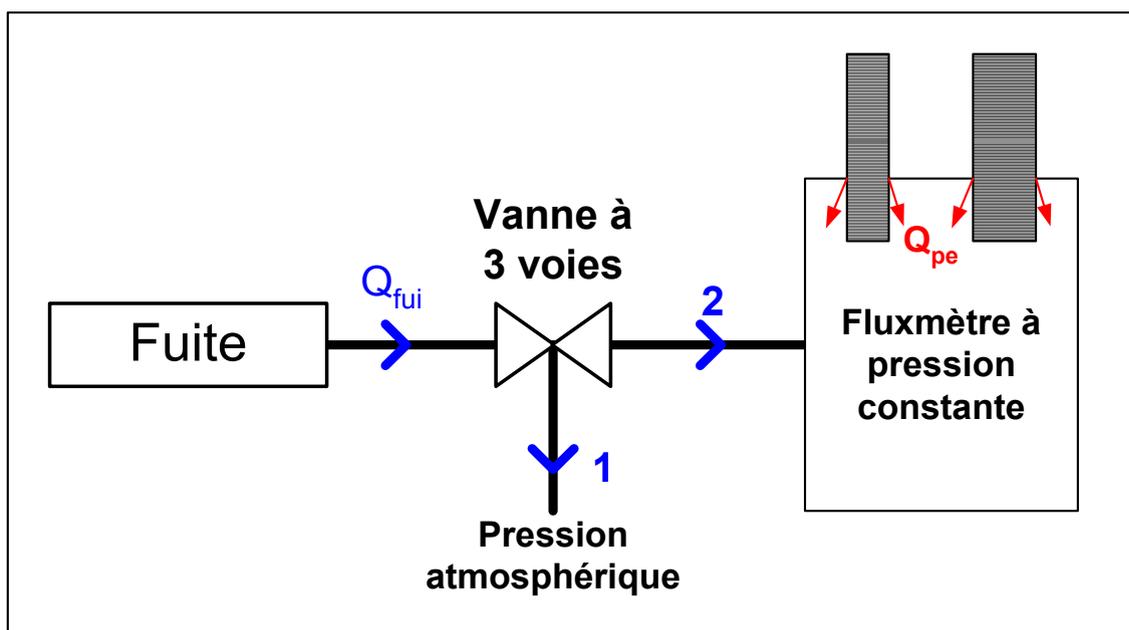


FIGURE 7.1 – Détermination des flux parasites avant et après la mesure
Dans un premier temps, la vanne est en position 1, la fuite débite vers la pression atmosphérique, le flux mesuré correspond uniquement aux flux gazeux thermiques Q_{th} et au flux issu des passages étanches Q_{pe} . Puis lorsque la vanne est mise en position 2, le fluxmètre mesure en plus le flux Q_{fui} issu de la fuite. La vanne est remise en position 1 où les deux flux parasites sont à nouveau mesurés.

Dans un premier temps, la fuite débite vers la pression atmosphérique. Les deux derniers termes de l'équation 4.20, autrement dit les flux gazeux thermiques et le flux issu des passages étanches, sont alors mesurés. Dans un deuxième temps, la vanne trois voies est actionnée afin que la fuite débite dans le fluxmètre. le flux gazeux correspondant à celui de la fuite auquel s'ajoutent les flux gazeux parasites est mesuré. Une fois la mesure terminée, la vanne est à nouveau actionnée pour permettre l'échappement vers la pression atmosphérique et de mesurer à nouveau les flux parasites. Le flux mesuré par le fluxmètre sera corrigé de la moyenne des deux déterminations avant et après la mesure. L'incertitude sur cette nouvelle correction sera à caractériser et correspondra à l'association du flux gazeux thermique et du flux issu des passages étanches. Une condition s'impose quant au choix de la vanne,

étant donné que la fuite doit toujours débiter soit vers la pression atmosphérique, soit vers le fluxmètre même au moment de l'actionnement de la vanne afin d'éviter une accumulation de molécules au niveaux de la fuite ou encore une surpression au niveau du fluxmètre dont le capteur différentielle est limité à 100 Pa.

Un autre point d'amélioration concerne le temps de mesure trop long pour les débits inférieur à $3 \cdot 10^{-9} \text{mol} \cdot \text{s}^{-1}$, qui peut atteindre 4 heures. En effet, les pistons ainsi que les volumes ont été optimisés pour les besoins liés à l'expansion continue et ne correspondent pas aux meilleures conditions de mesure de bas débit. Avec le piston de diamètre de 5 mm, le facteur k_0 de l'équation 4.7 est égale à 4. En utilisant un piston de diamètre 1 mm, il serait possible d'être des conditions plus favorables avec $k_0 = 2$ c'est-à-dire un temps identique pour les deux phases de mesure. Mais cela aurait pour conséquence d'augmenter le temps de mesure qui est déjà trop long. Pour diminuer le temps de mesure d'un facteur quatre, il faudrait limiter le volume de mesure à 10cm^3 . Les effets thermiques auraient ainsi moins d'influence.

En considérant ces deux points, une étude sera réalisée afin de déterminer s'il est plus avantageux d'apporter d'autres modifications à ce fluxmètre ou alors d'en concevoir un autre spécifique aux très faibles débits.

7.2 Le fluxmètre infrarouge

La mesure de débits par le fluxmètre infrarouge s'avère plus simple qu'avec celui à pression constante avec un fonctionnement totalement automatique. Nous avons vu au cours de ce mémoire que malheureusement il très difficile de mesurer le CO_2 du fait de sa présence dans l'air ambiant. Par contre, deux gaz offrent des perspectives intéressantes : l'hexafluorure de soufre (SF_6) qui est utilisé en tant qu'isolant électrique et le 2,3,3,3 - *Tetrafluoropropène* (1234yf) qui est le gaz frigorigène pour lequel les constructeurs automobiles ont opté pour remplacer le R-134a sur tout les véhicules à l'horizon 2017. Ces deux gaz ont l'avantage de ne pas être présents dans l'air ambiant, mais surtout d'absorber à la même longueur d'onde ($10,6 \mu\text{m}$). Le fluxmètre serait capable de détecter ces deux gaz un ajoutant seulement un filtre.

Il faut toutefois souligner l'inconvénient inhérent à ce fluxmètre qui est le coût des mélanges étalons nécessaires à l'étalonnage du spectromètre.

7.3 Les comparaisons

Afin de confirmer la validation métrologique du fluxmètre à pression constante, d'autres comparaisons sont déjà programmées avec le département *Débitométrie gazeuse et qualité de l'air* qui utilise la méthode gravimétrique (cf. § 3.2.1) pour des débits supérieurs à $0,3 \text{ mg} \cdot \text{s}^{-1}$ et une méthode basée sur la chromatographie pour les micro- et nano-débits. Puis, dans le cadre du JRP IND12, des mesures seront effectuées sur toute la gamme du fluxmètre pour plusieurs gaz tels que le R-134a, le SF₆, le 1234yf, l'azote ou encore le mélange azote-hydrogène (95/5). Ces mesures nous permettront de situer nos résultats par rapport aux différents laboratoires nationaux participants.

7.4 Étude de l'écoulement au sein d'une fuite de référence

Maintenant que le LNE est en mesure de déterminer des débits pour tout types de gaz, il sera possible de comparer les modèles théoriques d'écoulement au sein d'une fuite de référence aux données expérimentales en fonction des paramètres tels que les pressions en amont et en aval, la température ou encore la nature du gaz. En effet, actuellement pour une fuite de référence donnée, un étalonnage doit être réalisé pour chaque gaz utilisé. Une fois que le modèle théorique d'écoulement sera déterminé et validé par les données expérimentales, seul un étalonnage pour un gaz sera réalisé et le comportement pour tout autre gaz pourra être déduit du modèle.

Conclusion

CONCLUSION

Les travaux réalisés au cours de ce mémoire nous ont permis d'élargir nos capacités dans la mesure de débits référencés à la pression atmosphérique. En effet, le LNE est maintenant en mesure de réaliser des mesures de débits compris entre $3 \cdot 10^{-10}$ et $8,2 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ pour tout type de gaz.

Le fluxmètre infrarouge constituait la référence pour les bas débits référencé à la pression atmosphérique mais uniquement pour le gaz frigorigène R-134a. L'extension de ce fluxmètre pour la mesure de CO_2 s'est avérée délicate en raison de la présence de ce gaz dans l'air ambiant mais aussi de la présence de vapeur d'eau qui absorbe à la même longueur d'onde. En plus du coût relativement élevé des mélanges étalons, ces difficultés nous montrent qu'il faut être extrêmement attentif quant au choix d'une éventuelle extension à d'autre gaz de ce fluxmètre. En effet, il est indispensable que le gaz n'absorbe pas à la même longueur d'onde que la vapeur d'eau pour éviter toute interférence et ne pas utiliser le système de purge qui consomme une grande quantité d'air reconstitué. En revanche, ce fluxmètre offre l'avantage d'un fonctionnement totalement automatique, ce qui lui confère un atout dans le cas d'un nombre élevé de mesure comme pour le R-134a qui fait l'objet d'une réglementation.

Le fluxmètre gazeux à pression constante est quand à lui indifférent à la nature du gaz, mais présente des incertitudes encore trop élevées pour les débits inférieurs à $3 \cdot 10^{-9} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$. Une meilleure quantification des flux parasites permettront de diminuer considérablement ces incertitudes pour atteindre 5% au maximum. Les temps de mesure pour les très bas débits sont tout de même encore assez longs (jusqu'à 4 heures) ce qui entraîne une augmentation des flux parasites. Une diminution du volume de mesure ainsi que du diamètre du piston permettrait d'être dans les conditions optimales d'utilisation. Cependant, pour en faire un étalon de débit, il est indispensable d'effectuer d'autres comparaisons sur toute sa gamme mesure. La caractérisation du fluxmètre à pression constante nous a également permis de diminuer son incertitude lors de son utilisation sous vide aussi bien pour la mesure de fuites hélium que pour son utilisation dans la méthode dite de l'expansion continue.

Les objectifs de ce mémoire ont été atteints dans la mesure où nous sommes

CONCLUSION

maintenant capables de mesurer et d'assurer la traçabilité de faibles débits référencés à la pression atmosphérique pour tout type de gaz dans une gamme comprise entre $3 \cdot 10^{-10}$ et $8,2 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$.

Annexes

Annexe A

Notion sur les fuites de gaz de référence

Une fuite de gaz de référence (figure A.1) est un artéfact qui délivre un flux gazeux de référence pour une pression en aval de la fuite qui est soit la pression atmosphérique, soit le vide (c'est à dire une basse pression absolue).

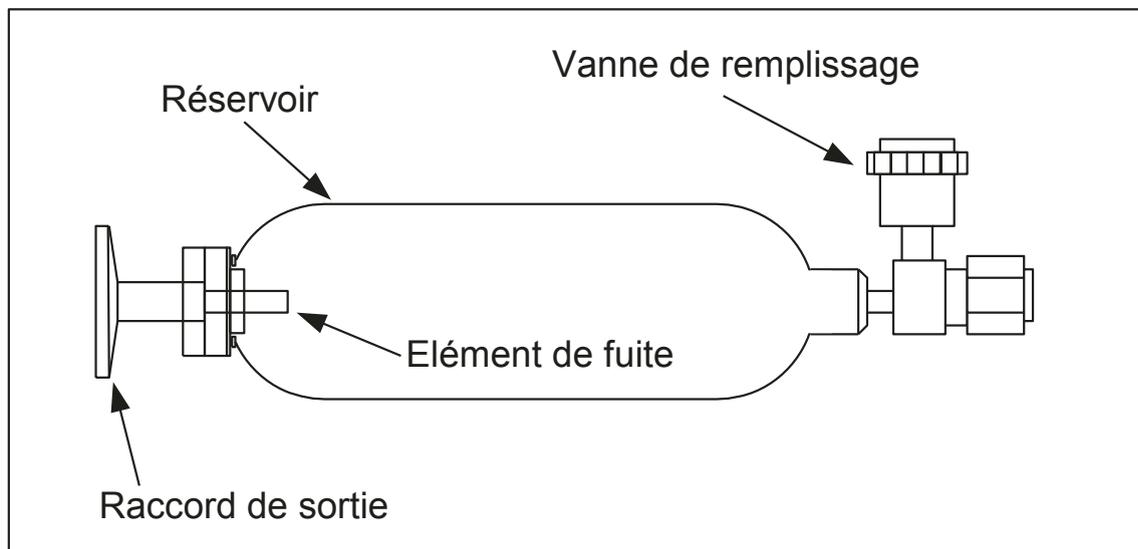


FIGURE A.1 – Représentation générale d'une fuite de référence

Il existe deux familles de fuites suivant la gamme de flux gazeux généré et les conditions pratiques d'utilisation : les fuites à perméation et les fuites à conductance.

Fuite à perméation

L'élément de fuite est un matériau perméable au gaz de travail (le verre pour le gaz hélium par exemple). La gamme de flux généré peut s'étendre de $1 \cdot 10^{-6} \text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ pour les fuites référencées au vide et de $1 \text{ g} \cdot \text{an}^{-1}$ à $50 \text{ g} \cdot \text{an}^{-1}$ pour les fuites de R-134a référencées à la pression atmosphérique. Dans la majorité des cas, l'élément fuite est monté sur un réservoir gaz. Le flux gazeux décroît dans le temps (entre 0,5 % par an et 5% par an suivant la valeur du flux gazeux nominal et la quantité de gaz présente dans le réservoir). Des expérimentations menées par le NIST ont abouti sur une formule empirique du flux gazeux molaire des fuites à perméation référencées au vide [26].

$$Q_m = A \cdot e^{\frac{-E}{RT}}, \quad (\text{A.1})$$

dans laquelle A est un paramètre qui dépend de la solubilité, de la diffusivité, de la surface et de l'épaisseur du matériau perméable ($\text{mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$), T la température (en K), E l'énergie d'activation du matériau (en $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$) et R la constante molaire des gaz ($\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$). Une relation entre le flux gazeux molaire et la différence de pression amont-aval ne peut être établie à partir de l'équation A.1. Par ailleurs, la pression de remplissage du réservoir (pression amont) des fuites n'est pas accessible. Le coefficient de température associé à ces fuites est relativement important (entre $2\% \cdot \text{K}^{-1}$ et $5\% \cdot \text{K}^{-1}$). Enfin, l'élément perméable est souvent fragile (cas des fuites hélium) et requiert des précautions de manipulation.

Fuite à conductance

La fuite est obtenue par rétrécissement du passage du gaz entre l'entrée et la sortie de la fuite. Ce rétrécissement peut se présenter sous la forme d'un tube capillaire, d'un orifice, ou d'un étranglement local d'un tube. La conductance de la fuite C_{fuite} dépend des dimensions géométriques du rétrécissement et de la pression moyenne dans l'élément de fuite [6]. Le flux gazeux généré Q est donné par la conductance

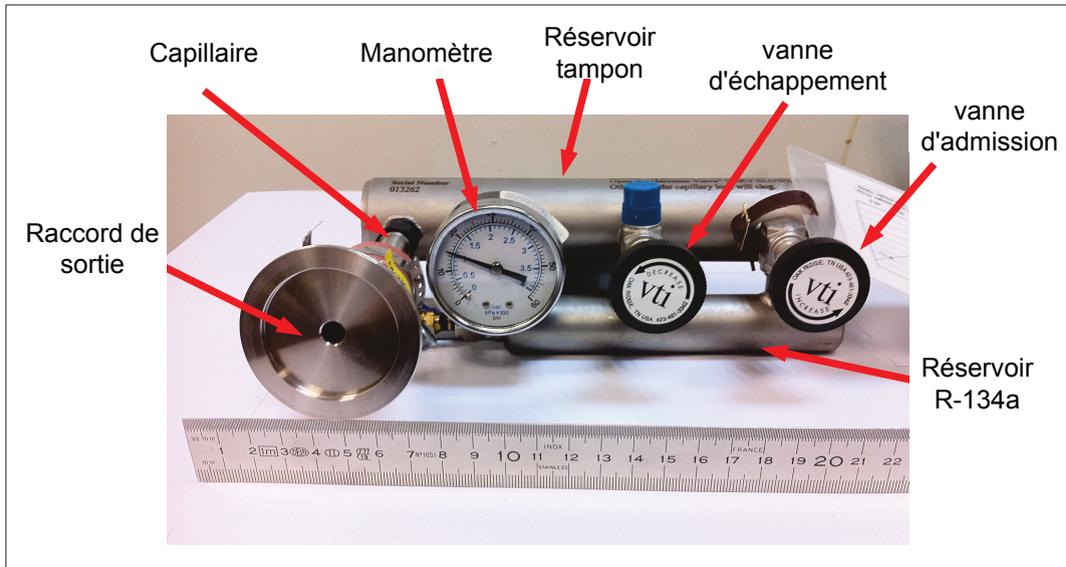


FIGURE A.2 – Fuite réglable à réservoir VTI

C_{fuite} et la différence des pressions amont P_{amont} et aval P_{aval} de la fuite.

$$Q = C_{fuite} \times (p_{amont} - p_{aval}). \quad (\text{A.2})$$

Le flux gazeux généré par ce type de fuite couvre la gamme $1 \cdot 10^{-8} \text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ à plus de $1 \cdot 10^{-2} \text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Les fuites à conductance peuvent être munies d'un réservoir. La taille du réservoir et la pression de remplissage sont adaptées au flux gazeux généré pour limiter la valeur de décroissance de ce flux dans le temps. Il existe également des fuites sans réservoir (figure A.3) pour lesquelles le flux gazeux dépend de la pression amont (et aval) et de la nature du gaz. Il est possible d'obtenir un flux gazeux modulable sur plus d'une décade pour une pression amont réglable habituellement jusqu'à 1000 kPa. Les fuites à conductance sont par construction plus robustes que les fuites à perméation et affectées d'un coefficient de température plus faible (généralement inférieur à $0,5\% \cdot \text{K}^{-1}$).

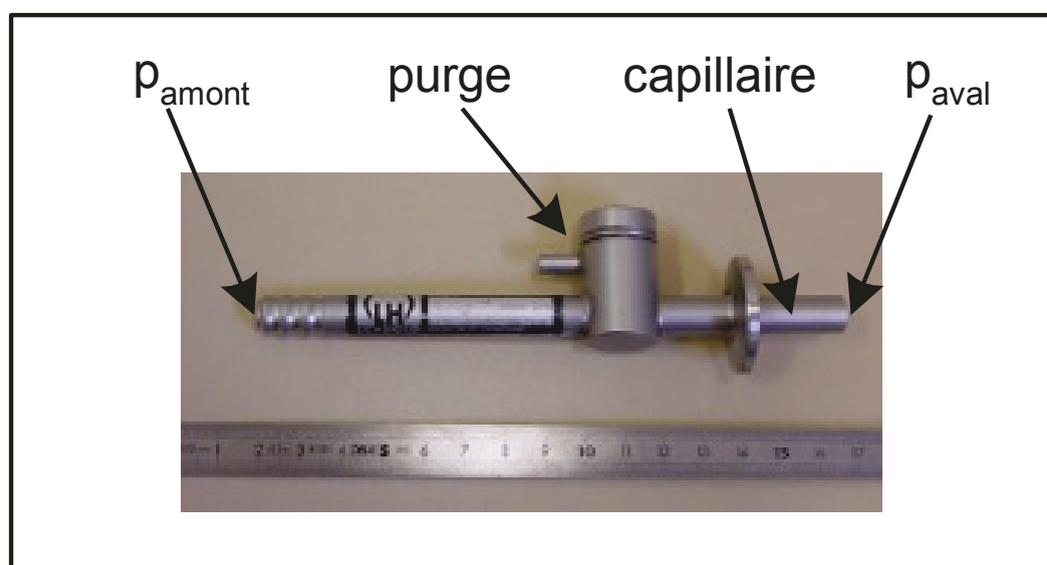


FIGURE A.3 – Fuite capillaire réglable Leybold

Annexe B

Le fluxmètre à pression constante

Dans cette annexe, sont présentées quelques photos du fluxmètre.

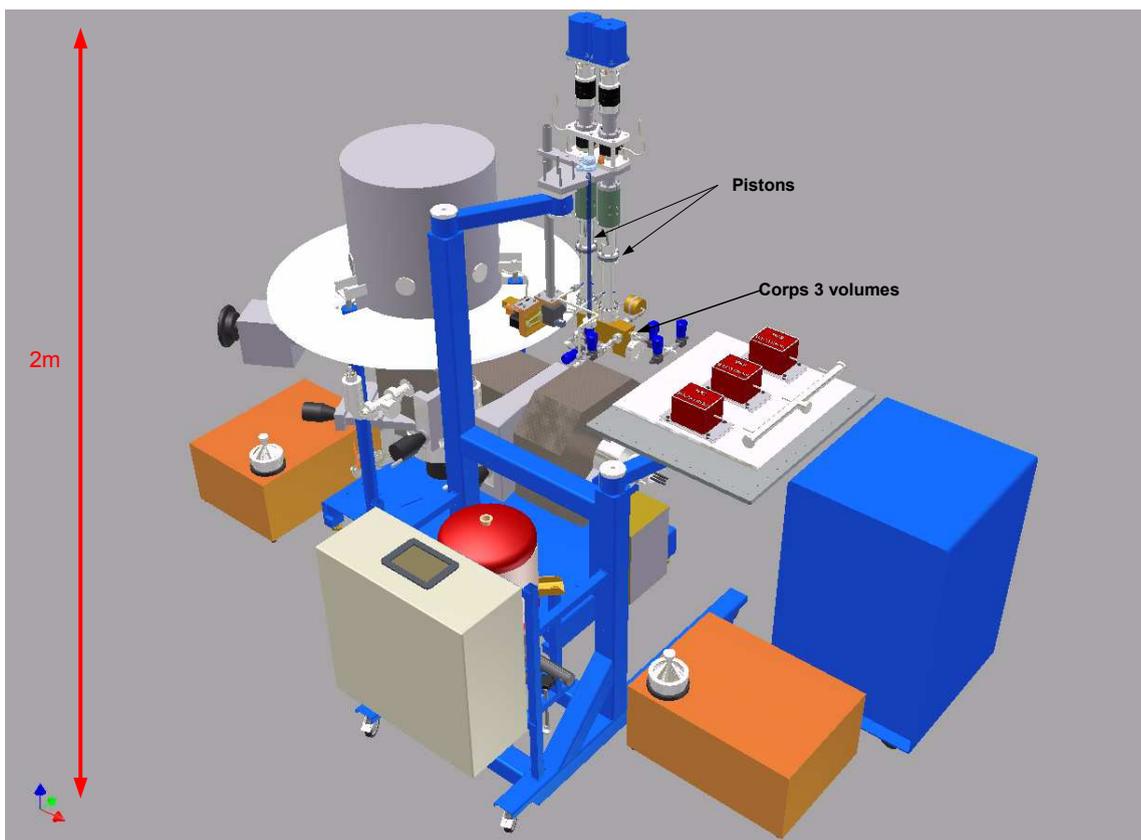


FIGURE B.1 – Vue d'ensemble du fluxmètre gazeux à pression constante

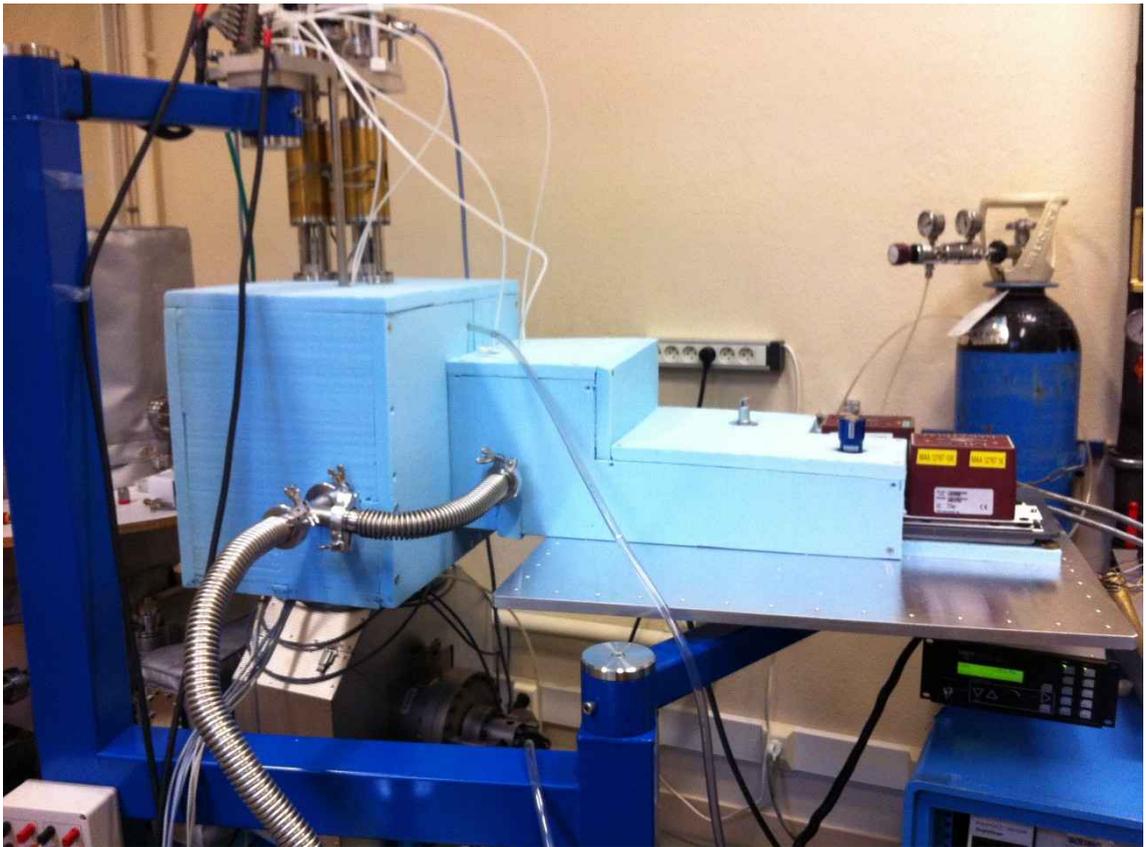


FIGURE B.2 – Caisson d'isolation thermique



FIGURE B.3 – Photo du corps 3 volumes

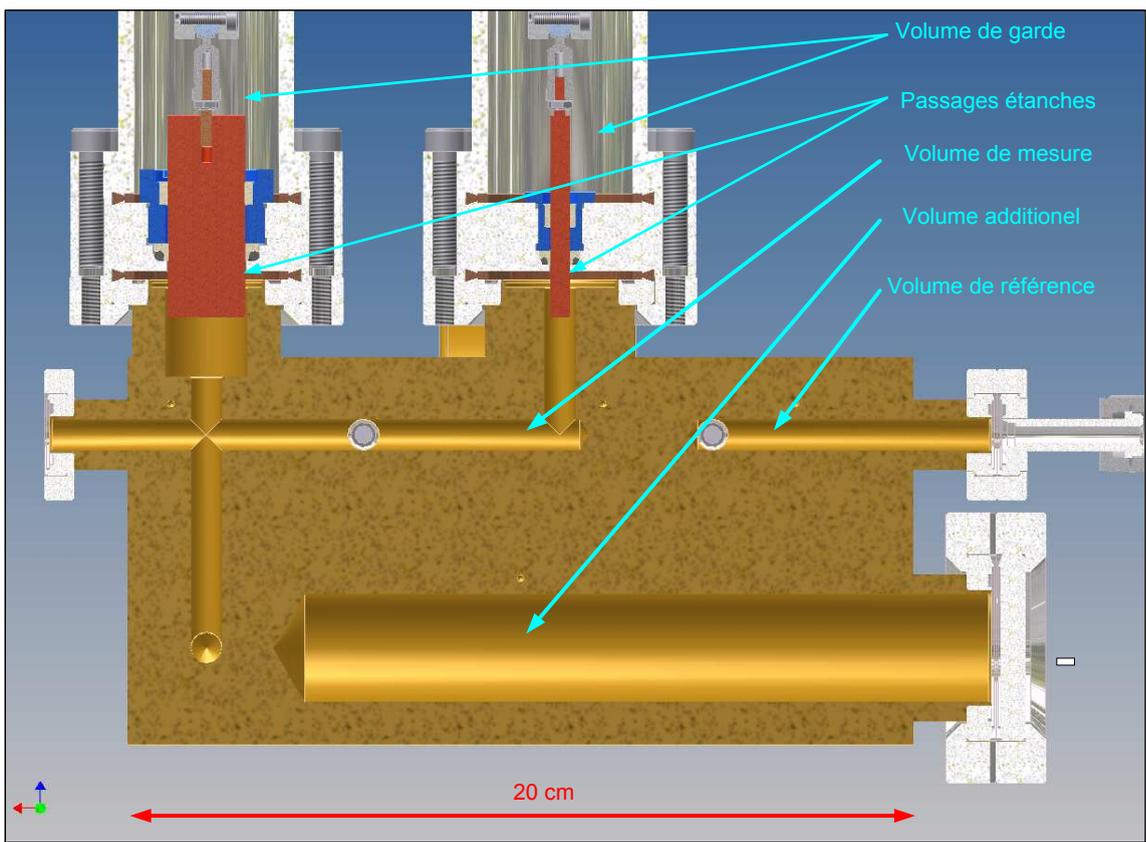


FIGURE B.4 – Vue Fonctionnelle du corps 3 volumes

Annexe C

Détermination de la température

Les capteurs de température à résistance de platine *Pt100* sont étalonnés pour des températures de 0 et 20 °C. Cet étalonnage associe la résistance du capteur à la température de référence. En chaque point, l'écart e_c par rapport à la norme EN 60751/A2 [16] est calculé :

$$e_c = R_c - R_{norme}(T), \quad (C.1)$$

où R_c est la résistance thermométrique du capteur à la température T et R_{norme} la résistance de la norme entre 0°C et 850 °C donnée par la relation :

$$R_{norme} = R_0(1 + AT + BT^2), \quad (C.2)$$

avec A et B les coefficients de la norme et $R_0 = 100\Omega$ pour un capteur *Pt100*. Une droite d'écart $e_r(R_c)$ est calculée à partir des deux points d'étalonnage. La température T calculée pour une résistance R_c mesurée par un multimètre étalonné :

$$T = T_{norme} [R_c - e_r(R_c)]. \quad (C.3)$$

$T_{norme}(R)$, la fonction inverse de la norme EN 60751/A2 se calcule facilement à partir de l'équation C.2 :

$$T_{norme}(R) = \frac{-A + \sqrt{A^2 - 4B(1 - R/R_0)}}{2B}. \quad (C.4)$$

Annexe D

La spectroscopie photo-acoustique

Depuis quelques années, la spectroscopie photo-acoustique refait l'objet d'un vif intérêt en raison de sa meilleure sensibilité par rapport à d'autres techniques de spectroscopie. En effet, il y a un énorme besoin pour les grandes sensibilités en particulier dans la détection de gaz polluants ou toxiques. Toutes les méthodes de spectroscopie sont basées sur les informations qualitatives et quantitatives recueillies en mesurant la quantité de lumière absorbée.

L'effet photo-acoustique

L'effet photo-acoustique est l'émission d'une vibration par un échantillon de gaz dans un espace clos, cette émission est provoquée par l'absorption de lumière modulée. Cet effet a été découvert en 1881 par Alexander Graham Bell, mais ne présente un intérêt que lorsque des microphones performants sont apparus au cours des années 1960. Le principe est le suivant : lorsqu'un échantillon de gaz est irradié par la source lumineuse, il absorbe une partie de l'énergie lumineuse qui est proportionnelle à la concentration. Cette énergie lumineuse est immédiatement libérée en chaleur qui augmente la pression dans l'espace clos. Lorsque la lumière incidente est modulée à une fréquence donnée, la pression augmente périodiquement à la même fréquence. Ces ondes de pression communément appelées ondes sonores sont simples à mesurer à l'aide d'un microphone dès lors que leur fréquence est comprise entre 20 Hz et 20 kHz. L'intensité de ces ondes dépend de plusieurs facteurs tels que

la nature et la concentration du gaz ainsi que l'intensité de la source lumineuse. La sélectivité de la spectroscopie provient due au fait que l'échantillon absorbe à une longueur d'onde donné qui lui est caractéristique.

Le microphone

Plus de cinquante ans de recherche et de développement ont permis d'avoir aujourd'hui des microphones à condensateur qui offrent une bonne sensibilité, une haute précision et une bonne stabilité ce qui en fait un détecteur idéal pour cette méthode de détection de gaz. Le microphone à condensateur est composé d'une mince membrane métallique à proximité immédiate d'une plaque rigide dans l'air ce qui forme un condensateur plan dont la capacité C varie en fonction de la distance d entre les deux éléments et dépend de la permittivité diélectrique :

$$C = \frac{\varepsilon \cdot S}{d}. \quad (\text{D.1})$$

Lorsque la pression dans la chambre de mesure augmente puis diminue, la membrane se déplace en va et vient et la capacité entre les deux plaques varie de la même façon. Une charge fixe est appliquée au microphone et les variations de tension associées au condensateur sont mesurées. Ces tensions alternatives sont les répliques des variations de pression acoustique dans la chambre de mesure.

Annexe E

Le Nafion

Le Nafion de DuPont est un copolymère développé par W. Grot à la fin des années 1960 en modifiant le Téflon®. C'est le premier polymère synthétique offrant des propriétés ioniques. Ces propriétés ioniques sont dues à l'ajout de groupes d'acide sulfonique (perfluoro-3,6-dioxa-4-méthyl-7-octène-sulfonique) dans le matériaux de base qui est le tétrafluoroéthylène (Téflon®). Le Nafion allie ainsi les propriétés physiques et chimiques de son matériaux de base ainsi que celles des groupe d'acide.

Propriétés physiques et chimiques du Nafion

Comme le téflon, le Nafion est extrêmement résistant aux attaques chimiques. Selon DuPont, seuls les métaux alcalins peuvent directement attaquer le Nafion dans les conditions normales de température et de pression. Cela signifie que le Nafion ne libère pas de fragments ou de produits de dégradations dans le milieu environnant. Il résiste également à des températures relativement élevées par rapport à d'autres polymères avec une utilisation dans certaines applications à des températures pouvant atteindre 190 °C.

Cependant, contrairement au téflon, le Nafion a un pouvoir conducteur ionique très fort ce qui en fait un polymère échangeur de cations. Il est également un catalyseur d'acide en remplissant la fonction de donneur de protons. Le Nafion est également très sélectif et très perméable vis à vis de l'eau grâce aux groupes d'acide sulfonique (figure E.1) qui ont un pouvoir hydratation très fort. Le Nafion absorbe très

efficacement l'eau grâce aux interconnexions entre les groupes d'acide qui conduisent à un transfert très rapide de l'eau à travers le Nafion.

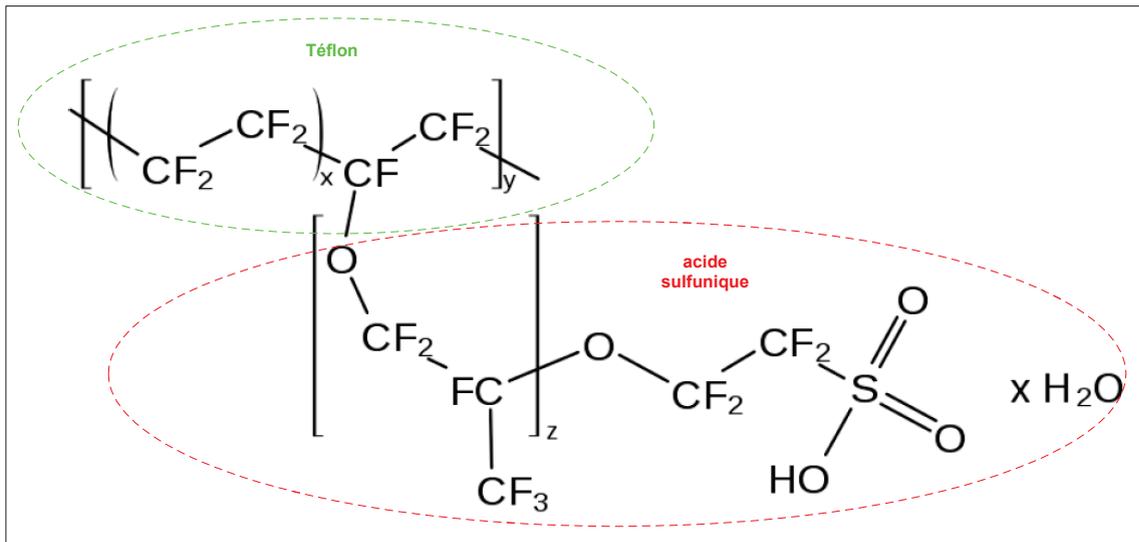


FIGURE E.1 – Formule chimique du Nafion

Application du Nafion

Ces propriétés spécifiques sont aujourd'hui exploitées dans principalement quatre applications :

- Il permet de fabriquer des membranes échangeuses d'ions utilisées pour produire, par l'électrolyse de l'eau salée, les gaz de chlore et de soude (hydroxyde de sodium).
- Il est utilisé pour sécher de manière sélective ou pour au contraire humidifier un gaz. Le plus gros segment de cette application concerne le domaine médical avec les souffles de séchage ou d'humidification pour l'anesthésie, les soins respiratoires ou encore la pléthysmographie qui est un ensemble de méthodes servant à mesurer le flot sanguin. Il existe également de nombreuses applications en laboratoire et dans l'industrie.
- Il est également utilisé comme membranes échangeuses de protons dans les piles à combustible à électrode polymère.
- Enfin, il est utilisé comme catalyseur dans la production de produits chimiques

fins super acide.

Apparence physique du Nafion

Initialement, le Nafion est produit sous forme de sel avec des groupes acides neutralisés, il est alors thermoplastique et chimiquement inactif. Une fois extrudé dans sa forme finale, il devient un plastique semblable au Téflon mais en plus clair. Il est aussitôt activé chimiquement par conversion du sel à la forme acide et réagit immédiatement avec son environnement. L'humidité est absorbée et échangée et les gaz organiques présent dans l'air peuvent réagir. Ces gaz peuvent se combiner et donner forme à des composés plus gros qui au fil du temps donne lieu à des dépôts de résidus sur la surface du Nafion lui donnant une coloration jaune, puis brune et même noir (figure E.2). Les fonctionnalités du Nafion ne sont pas affectées et la couleur initiale peut être retrouvée par un lavage à l'aide de solvants.

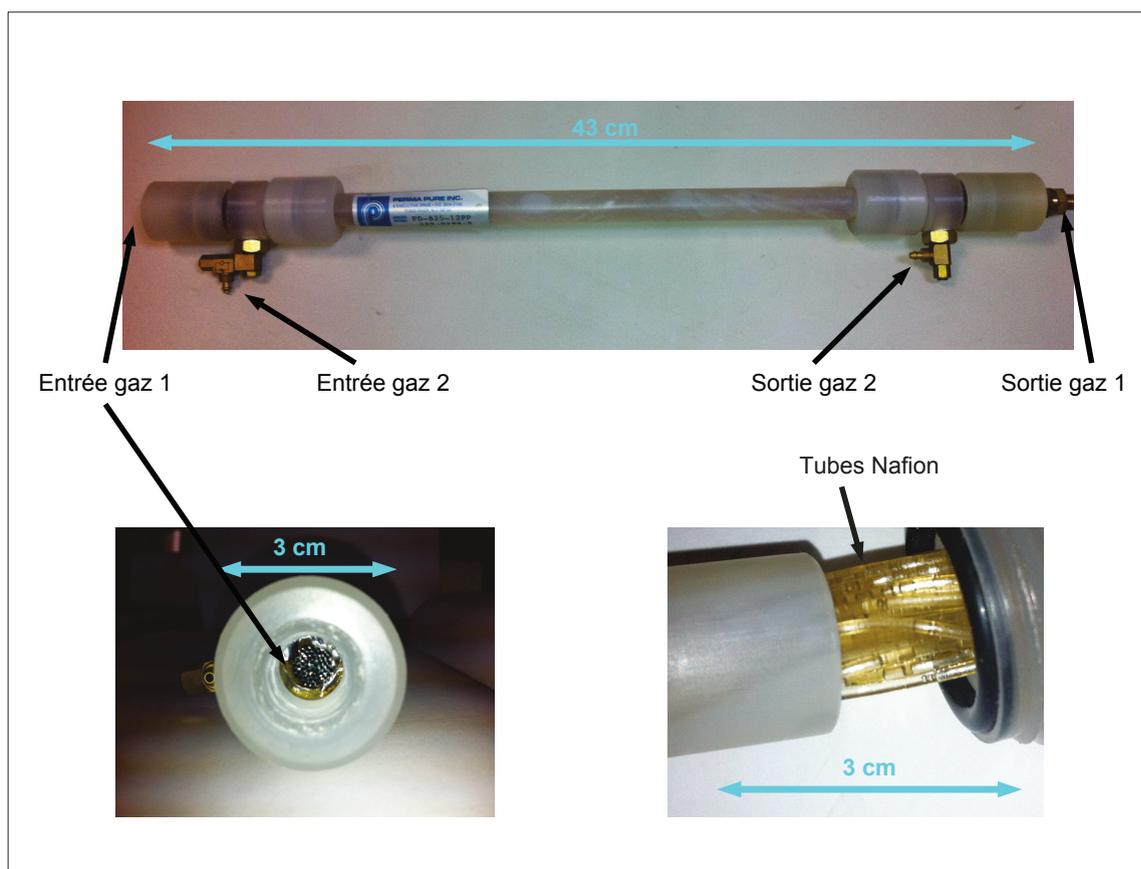


FIGURE E.2 – Tube Nafion de Permapure

Annexe F

Les volumes d'expansion

Avec cette méthode, on mesure un volume sans manomètre associé à partir d'un volume étalon. Elle consiste à effectuer une détente du gaz contenu dans un des volumes entre deux volumes initialement isolés par une vanne [27].

Initialement, un des deux volumes est mis en surpression et le deuxième est mis en dépression. Lorsque les deux volumes sont isolés, la pression et la température dans les deux volumes sont mesurées nous avons alors une pression P_0 et une température T_0 dans le volume mis en surpression et P_{res} et T_{res} dans le volume mis en dépression.

Après que la détente a été effectuée, la pression et la température d'équilibre ($P_e; T_e$) dans les deux volumes sont mesurées. En négligeant les fuites résiduelles, la conservation de la masse gazeuse et la loi des gaz parfaits permet d'établir la relation suivante, en considérant n le nombre de molécules :

$$n_{\text{étalon}}^{initial} + n_{\text{accumulation}}^{initial} = n_{\text{étalon}}^{final} + n_{\text{accumulation}}^{final}, \quad (\text{F.1})$$

soit en utilisant la loi des gaz parfaits :

$$\frac{P_{res}}{T_{res}} \cdot V_e + \frac{P_0}{T_0} \cdot V = \frac{P_e}{T_e} \cdot (V_e + V). \quad (\text{F.2})$$

Nous en déduisons le rapport des deux volumes :

$$R = \frac{V}{V_e} = \frac{\frac{P_e}{T_e} - \frac{P_{res}}{T_{res}}}{\frac{P_0}{T_0} - \frac{P_e}{T_e}}. \quad (\text{F.3})$$

Le rapport pression-température est considéré à l'instant de l'ouverture de la vanne. Si l'un des deux volumes est connu, la valeur du second peut en être déduite.

Dans les deux volumes, les pressions sont mesurées par deux manomètres numériques résonants, de marque druck DPI 142, associés à chacun des volumes. Comme il peut y avoir des fuites et des fluctuations de température, les pressions ne sont pas stables dans le temps. Les températures sont mesurées par des sondes en contact avec les parois du volume à mesurer et du volume étalon. La pression d'équilibre P_e dans le volume étalon et dans le volume à mesurer qui sont reliés et la température d'équilibre T_e est mesurée par le manomètre associé au volume étalon et la température est mesurée par une sonde insérée dans la paroi du volume étalon. Les rapports pression et température sont modélisés par la méthode des moindres carrés :

$$\frac{P_0}{T_0} = a \cdot t + b, \quad \frac{P_{res}}{T_{res}} = d \cdot t + e, \quad \frac{P_e}{T_e} = f \cdot t + k, \quad (\text{F.4})$$

Quatre cycles de mesures sont effectués, le premier n'est pas pris en compte. Pour chacun des trois cycles suivants indexés de 1 à 3, en établissant l'instant d'ouverture de la vanne t_0 (à la période d'enregistrement près), on peut déduire les valeurs $\frac{P_0}{T_0}(t_0)$, $\frac{P_{res}}{T_{res}}(t_0)$ et $\frac{P_e}{T_e}(t_0)$. Les valeurs successives du rapport du volume à mesurer sur le volume étalon se calcule à chaque cycle par la relation suivante :

$$R_i = \frac{\frac{P_e}{T_e}(t_0, i) - \frac{P_{res}}{T_{res}}(t_0, i)}{\frac{P_0}{T_0}(t_0, i) - \frac{P_e}{T_e}(t_0, i)}, \quad (\text{F.5})$$

où i représente l'indice du cycle (compris entre 1 et 3). Le volume s'exprime par conséquent de la manière suivante :

$$V = V_e \cdot \frac{\sum_{i=1}^3 R_i}{3}. \quad (\text{F.6})$$

Annexe G

Le fluxmètre Infrarouge

Dans cette annexe, sont présentées quelques photos du fluxmètre infrarouge.



FIGURE G.1 – Vue d'ensemble du fluxmètre infrarouge

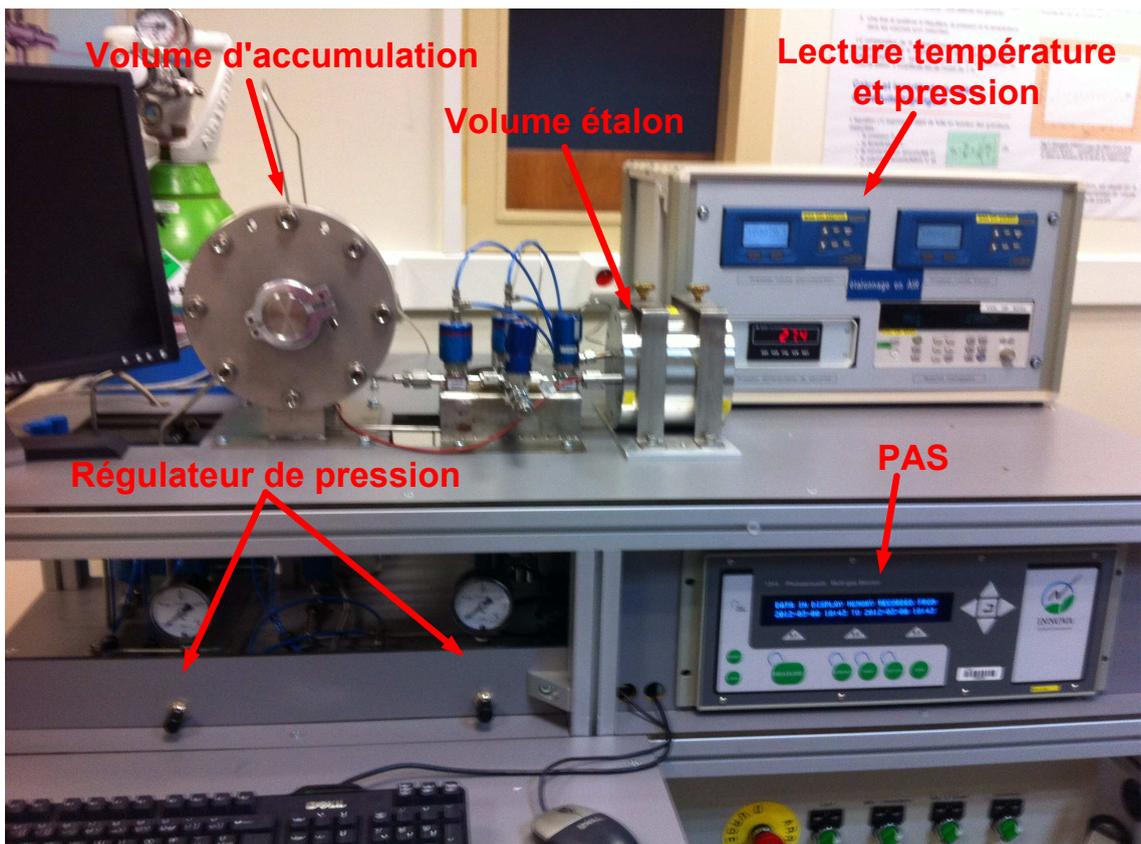


FIGURE G.2 – Vue détaillée du fluxmètre infrarouge

Bibliographie

- [1] B.N. TAYLOR D.B. NEWELL et P.J. MOHR. Codata recommended values of the fundamentals physical constants :2006. *Review of Modern Physics*, 80(2) : 633–730, 2008. 2.2
- [2] J. DELAFOSSE et G. MONGODIN. *Les calculs de la technique du vide*. Société française des ingénieurs et techniciens du vide, 1961. 2.3
- [3] S. Dushman. *Scientific Foundations of Vacuum Technology*. John Wiley and Sons, New York, 1949. 2.3
- [4] S.G. BRUSH. The development of the kinetic theory of gases. *Annals of Science*, 3(14), 1958. 2.4
- [5] B.B. DAYTON. *Fondations of Vacuum Science Technology*. J.M. Lafferty chez John Wiley and Sons inc., New york, 1998. 1
- [6] J.L. CHAMBERLIN. The modeling of standard gas leaks. *Journal of Vacuum Science Technology A*, 7 (3) :2408–2413, 1989. 2.4, 6.2.2, A
- [7] A. RICHARDT et I. RICHARDT. *La technique du vide*. Editions IN FINE, 1998. 2.4
- [8] I. MORGADO. Design and realization of a primary and secondary leak standards for the measurement of leak flow rates refrigerants, Thèse de Doctorat, Ecole Nationale supérieure des Mines de Paris, 2008. 3, 3.2.2, 5.1.1, 5.1.3
- [9] NF EN 14624 Norme européenne, Norme française. Performance des détecteurs

- de fuite mobiles et des contrôleurs d'ambiance de fuites frigorigènes halogénés, AFNOR, 2005. 3, 3.2
- [10] F. BOINEAU. Étude, réalisation et caractérisation métrologique d'un fluxmètre gazeux à pression constante, Mémoire d'ingénieur, Conservatoire National des Arts et Métiers, 2010. 3.1, 4.1.1, 4.1.1, 4.2.1, 4.2.2.2, 4.3
- [11] J.C. LEGRAS F. BOINEAU et P. OTAL. Etalonnage des fuites d'hélium : méthodes de référence et dissémination de 10^{-10} Pa.m³.s⁻¹ à 10^{-2} Pa.m³.s⁻¹. *Revue Française de métrologie*, 17 :3–9, 2009. 3.1.1
- [12] F. BARON. Contribution à la métrologie des très basses pressions absolues, Mémoire d'ingénieur, Conservatoire National des Arts et Métiers, 2002. 3.1.3
- [13] K. JOUSTEN et U. BECKER. A primary standard for the calibration of sniffer test leak device. *Metrologia*, 46 :560–568, 2009. 4.1.1, 4.1.1, 4.1.3
- [14] F. BOINEAU et P. OTAL. Réalisation d'une référence primaire pour la mesure de flux gazeux entre 4.10^{-12} Pa.m³.s⁻¹ et 4.10^{-7} Pa.m³.s⁻¹. *Revue Française de métrologie*, 4(24) :35–51, 2010. 4.2.2
- [15] F. BOINEAU. Characterization of the lne constant pressure flowmeter for the leak flow rates measurements with reference to vaccum and atmospheric pressure. *PTB-Mitteilungen*, 3 :313–316, 2011. 4.2.2, 4.2.3
- [16] NF EN 60751A Norme européenne, Norme française. Capteurs industriels à résistance thermométrique de platine, AFNOR, 1996. 4.2.2, C
- [17] G.N. PEGGS. The measurement of gas throughput in range (sic) 10^{-4} to 10^{-10} Pa.m³.s⁻¹. *Vacuum B*, 26 :321–328, 1976. 4.2.2
- [18] Norme française NF ENV 13005. Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure, (GUM), AFNOR, Août 1999. 4.3
- [19] D. CLODIC. Measurement and control of refrigerant leaks. In *AICARR CONFERENCE*, 2000. 5

- [20] J. CHRISTENSEN. The bruël & kjaer photo-acoustic transducer system and its physical properties. *The Bruël & Kjaer Technical Review*, 1 :4–19, 1990. 5.1.1
- [21] Manuel d'utilisation. *1314 Photoacoustic Multi-gas Monitor*. INNOVA AirTech Instruments, DANEMARK. 5.2.1
- [22] M. BERGOGLIO et al. Mathematical model applied to the experimental calibration of a capillary standard leak. *Flow Measurement and Instrumentation*, 17 :129–138, 2006. 6.1, 6.2.2
- [23] James A. BASFORD Charles D. HERLICH. Recommended practices for the calibration and use of leaks. *Journal of Vacuum Science Technology A*, 10-1 : 1–17, 1992. 6.1
- [24] M. DESENFANT et S. AMAROCHE. Evaluation d'aptitude par comparaisons interlaboratoires. 13ème Congrès de Métrologie, Lille 2007. 6.1
- [25] Fiche de données de sécurité. 1,1,1,2-tétrafluoroéthane (r-134a), 2011. 6.2.2
- [26] P.J. ABBOTT et S.A. TISON. Commercial helium permeation leak standards : their properties and reliability. *Journal of Vacuum Science Technology A*, 13 : 1242–1246, 1996. A
- [27] A. DELVOLTA. Mise au point de la méthode d'étalonnage par volumes d'expansion, Rapport de stage, Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aéronautique, 2000. F

Résumé :

Les mesures de faibles débits gazeux référencés à la pression atmosphérique sont peu caractérisées à ce jour. Dans le cadre de projets européens, des laboratoires nationaux de métrologie approfondissent leurs connaissances dans ce domaine afin de répondre au besoin de traçabilité des débits de fuite quelle que soit la nature du gaz considéré. Au Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), la traçabilité est bien établie pour les mesures de débit du gaz frigorigène R-134a, entre $3 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ à $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$, avec le fluxmètre infrarouge. Par ailleurs, le LNE dispose d'un fluxmètre gazeux à pression constante dont la gamme de mesure est comprise entre $4 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ à $8,2 \cdot 10^{-7} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$. Cette étude porte d'une part sur l'extension du fluxmètre infrarouge à la mesure de débit de CO_2 et d'autre part sur la caractérisation métrologique du fluxmètre gazeux à pression constante pour la mesure des débits gazeux référencés à la pression atmosphérique. Des comparaisons entre ces deux références primaires de débits sont effectuées sur leur étendue de recoupement à l'aide de fuites de transfert, pour le R-134a et le CO_2 . Des mesures complémentaires effectuées sur une fuite capillaire étalonnée en hélium et R-134a par le Laboratoire national de métrologie italien, pour les besoins d'un projet commun de recherche, assurent la validation métrologique du calcul d'incertitude établi pour les deux fluxmètres du LNE.

Mots clés :

fluxmètre gazeux, détection de fuite, métrologie, flux gazeux, spectroscopie infrarouge, fuite de référence, vide.

Abstract :

Measurements of low gas flow rates referred to atmospheric pressure have been poorly characterized thus far. In the context of European research projects, some national metrology institutes are deepening their knowledge to meet traceability requirements of leak flow rates regardless of the type of gas. At the Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), traceability is well established for flow measurements of the refrigerant gas R-134a, between $3 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ to $1,5 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$, using a infrared flowmeter. Moreover, LNE also has a constant pressure flowmeter for flow measurements between $4 \cdot 10^{-10} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ to $8,2 \cdot 10^{-8} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1}$ for any gas. The aim of the first part of this study is to extend an infrared flowmeter for flow measurement of CO_2 . The second part is the metrological characterization of the constant pressure flowmeter for measurement of gas flow rates referred to atmospheric pressure. Comparisons between these two primary flow rates standards are performed in their common measurements range with transfer leaks using R-134a and CO_2 . Additional measurements performed with a capillary leak previously calibrated with helium and R-134a by the Italian metrology institute, for the purposes of a joint research project, ensure the metrological validation of the uncertainty's calculation established for the LNE flowmeters.

Keywords :

gas flowmeter, leak detector, metrology, gas flow rates, infrared spectroscopy, standard leak, vacuum.