



J. BARBE

# Nouvelle référence nationale pour l'étalonnage des débitmètres laminaires de type Molbloc entre $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ et $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$

## *New national standard for the calibration of Molbloc laminar flowmeters from $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ to $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$*

Jean BARBE, Catherine YARDIN et Tatiana MACÉ

Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), 1 Rue Gaston Boissier, 75724 Paris Cedex 15, France, jean.barbe@lne.fr.

### Résumé

Le LNE a mis en place une nouvelle référence nationale en débitmétrie gazeuse entre  $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  d'azote ou d'air sec pour réaliser l'étalonnage de manière automatique des débitmètres laminaires de type Molbloc. Cet article présente les travaux de qualification métrologique de cette référence qui repose sur le principe de la méthode gravimétrique dynamique : optimisation de la méthode pour réduire d'un facteur 2 à 3 l'incertitude de mesure par rapport à celle obtenue avec les anciens bancs gravimétriques du LNE et participation à une comparaison internationale pour valider ce résultat. Le calcul d'incertitude est développé jusqu'au cas de l'étalonnage d'un débitmètre laminaire de type Molbloc.

**MOTS CLÉS** : MÉTHODE GRAVIMÉTRIQUE DYNAMIQUE, BANC DE RÉFÉRENCE, INCERTITUDE, COMPARAISON, ÉTALONNAGE.

### Abstract

*LNE has set up a new national standard in gas flowrate measurement between  $0.2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  and  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  of nitrogen or dry air to calibrate automatically Molbloc laminar flowmeters. This paper describes the metrological qualification of this standard based on the dynamic gravimetric method: optimization of the method to reduce the uncertainty by a factor of 2 compared to those obtained with the LNE old gravimetric benches, participation to an interlaboratory comparison to validate this result. The uncertainty calculation is developed up to the calibration of a Molbloc laminar flowmeter.*

**KEY WORDS**: DYNAMIC GRAVIMETRIC METHOD, REFERENCE BENCH, UNCERTAINTY, COMPARISON, CALIBRATION.

### 1. Introduction

Le LNE a développé des bancs de référence en débitmétrie gazeuse fondés sur le principe de la méthode gravimétrique dynamique [1] qu'il utilise depuis le début des années 2000 pour étalonner les débitmètres laminaires de type Molbloc. L'incertitude d'étalonnage des bancs gravimétriques du LNE est comprise entre 0,2 % et 0,4 % dans le domaine des débits massiques compris entre  $0,03 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Aujourd'hui, des débitmètres de type Molbloc plus performants sont commercialisés permettant des mesures avec une incertitude comprise entre 0,1 % et 0,2 %. De plus les principaux laboratoires nationaux de métrologie (NIST, NMIJ, PTB ou VSL) revendiquent des possibilités de mesure et d'étalonnage (CMC) avec des incertitudes d'étalonnage comprises entre 0,05 % et 0,1 %. Dans ce contexte, les incertitudes des bancs de référence du LNE n'étaient plus compatibles avec les besoins de raccordement des utilisateurs de ces débitmètres de nouvelle génération.

C'est pourquoi, le LNE devait améliorer ses bancs d'étalonnage. Mais compte tenu des investissements importants, tant en personnel qu'en équipement, à engager pour modifier les bancs existants dans le but de diminuer l'incertitude d'un facteur 2 à 3, le LNE

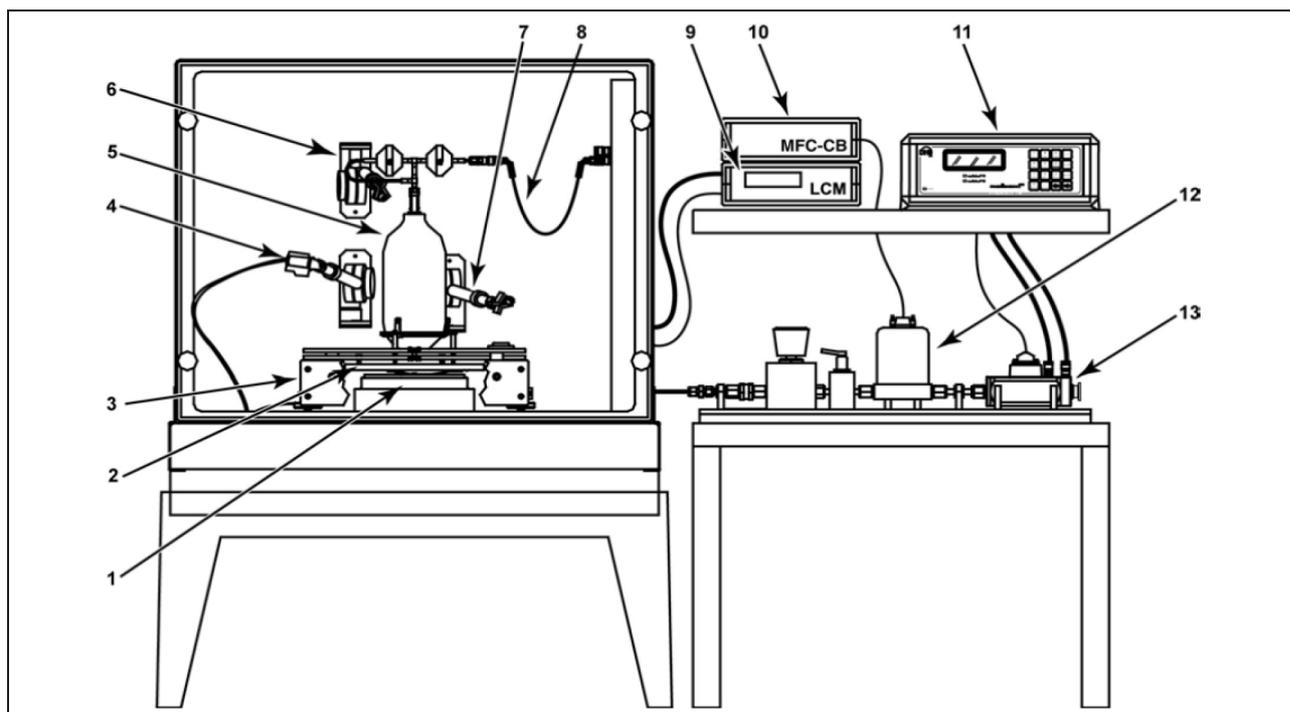


Fig. 1. – Disposition des différents éléments du nouveau banc de mesure GFS. 1. balance de portée 2,3 kg et de résolution 0,1 mg ; 2. masse de 2 kg ; 3. système automatique de charge/décharge ; 4. sonde pour la mesure de la température ambiante et de l'humidité relative à proximité et mi-hauteur du réservoir, utilisée pour la correction de la poussée de l'air sur la masse mesurée ; 5. réservoir de gaz de 1,1 L ou 1,5 L muni de son détendeur double étages dont la masse à vide est 1,7 kg ou 2,1 kg ; 6. sonde pour la mesure de la température ambiante et de l'humidité relative au niveau du deuxième étage du régulateur de pression, utilisée pour calculer la poussée de l'air sur le système de détente ; 7. sonde infrarouge pour s'assurer que la température à la surface du réservoir est supérieure à la température de rosée et éviter ainsi tout phénomène de condensation ; 8. caténaire de transfert du gaz située entre le deuxième étage du régulateur de pression et le caisson d'isolation de la balance ; 9. enregistreur des grandeurs masse, temps, pression atmosphérique, température et humidité relative au voisinage du réservoir et du détendeur, au moyen du « *Laboratory Conditions Monitor* » (LCM) ; 10. boîtier « *Mass Flow Controllers – Control Box* » (MFC-CB) pour le pilotage du Régulateur de débit massique (RDM) ; 11. terminal Molbox pour l'appareil en étalonnage (DUT) ; 12. régulateur de débit massique (RDM) ; 13. appareil en étalonnage (DUT).

a renoncé à ces travaux. Il a préféré s'équiper d'un nouveau banc de référence, appelé GFS (*Gravimetric Flow Standard*) [2], fonctionnant sur le même principe gravimétrique dynamique que ceux des bancs déjà existants au LNE. Ce nouveau banc est commercialisé par la société Fluke pour pouvoir générer des débits massiques compris entre  $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  d'azote ou d'air sec, avec une incertitude élargie meilleure que 0,1 %. Comme ce banc ne couvre pas la totalité de l'étendue de mesure des débitmètres commercialisés, le LNE a décidé de conserver une partie de ses anciens bancs pour l'étalonnage des débitmètres de type Molbloc entre  $0,03 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et entre  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $2\,200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et d'utiliser ce nouveau banc pour la gamme intermédiaire de débits.

Les travaux métrologiques réalisés pour valider la mise en place de ce nouveau banc et en faire une référence comportent trois volets :

- évaluation de l'incertitude de mesure du débit massique de référence généré avec le GFS à partir d'une linéarisation en 13 valeurs de débit réparties sur l'ensemble de la gamme de mesure du banc ;

- évaluation de l'incertitude d'étalonnage d'un débitmètre de type Molbloc réalisé avec le nouveau banc ;
- organisation d'une comparaison internationale regroupant des laboratoires nationaux de métrologie ayant des références de mesure dans ce domaine.

L'objet de cet article est de décrire le nouveau banc de référence et d'étalonnage mis en place au LNE et de présenter les différentes étapes de sa qualification métrologique.

## 2. Description du nouveau banc de référence

Le nouveau banc GFS est présenté sur les figures 1 et 2.

La méthode gravimétrique dynamique repose sur le principe d'une pesée en temps réel d'une masse de gaz perdue, par un réservoir sous pression, pendant un intervalle de temps donné. Les masses perdues sont comprises entre 1 g pour un débit de  $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et 20 g pour un débit de  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ , correspondant à des intervalles de temps de 5 000 s et 100 s respectivement.



Fig. 2. – Photographie de l'ensemble de pesage du réservoir sous pression.

Les principales améliorations apportées par le banc GFS, par rapport aux bancs gravimétriques du LNE sont les suivantes :

- utilisation d'une balance électronique plus exacte et plus rapide pour mesurer des masses en mode dynamique ;
- utilisation d'une plateforme automatique de charge/décharge de la balance pour obtenir le point zéro (balance à vide) et un point de portée avec une masse de référence externe de 2 kg (approximativement la masse du réservoir). Ces opérations, appelées « autozéros », permettent d'effectuer d'une part, la correction de dérive de la balance au point zéro et d'autre part, de déterminer le facteur d'ajustage au point de portée. Les « autozéros » sont réalisés à intervalles définis suivant le débit à mesurer sans altérer ni arrêter le débit ;
- mesure en continu des conditions ambiantes dans la zone de pesée pour corriger la masse brute de la bouteille des variations de poussée de l'air ;
- réalisation d'une caténaire en Perfluoroalkoxy (PFA) pour le transfert du gaz du réservoir vers le débitmètre dont la forme minimise les forces dues à la pression de ligne (effet « Bourdon ») et permet de les conserver lors du repositionnement du réservoir sur la balance ;
- utilisation d'un système de régulation de pression à double étages performant permettant de maintenir un débit constant sur toute la ligne de gaz pendant la durée de l'essai (variation inférieure à 20 Pa sous une pression de ligne de 250 kPa).

Le réservoir sous une pression de 15 MPa libère le gaz en continu sous une pression réglée comprise entre 550 kPa et 700 kPa au moyen du détendeur double étages. Le réservoir est placé sur la balance installée sur un bloc de granit et enfermée dans un caisson de protection pour l'isoler du reste de la pièce (déplacement de personnes, vibrations...).

Le gaz circule ensuite dans la caténaire (tuyau souple connecté entre le détendeur et le raccord fixé sur la paroi du caisson et pesant environ 17 g). Le gaz alimente ensuite le DUT sous une pression comprise entre 200 kPa et 500 kPa au moyen du régulateur de pression monté en amont du RDM.

Avant de commencer les acquisitions, le zéro et le calibrage de la balance sont réalisés. Lorsque le débit généré est stabilisé, l'enregistrement des lectures de la masse horodatées (cinq par seconde) et des données environnementales une fois par seconde est déclenché. Les mesures de la pression atmosphérique, de la température et de l'humidité ambiante, faites en continu, permettent de compenser les variations de poussée de l'air sur la masse du réservoir. L'échange du réservoir avec la masse de référence à intervalles réguliers compense également la dérive de la balance observée au cours de l'essai.

Le débit massique est calculé lorsque la masse de gaz ( $m$ ), choisie au début de l'essai, a été libérée par le réservoir pendant l'intervalle de temps correspondant ( $t_d$ ).

### 3. Évaluation de l'incertitude du débit massique de référence

#### 3.1. Expression du débit massique $q_m$

La masse de gaz perdue par le réservoir ( $m$ ) est déterminée par la différence entre deux pesées brutes ( $i$ ) du réservoir ( $\Delta m_i$ ) à laquelle s'ajoutent les éléments correctifs suivants :

- facteur d'ajustage  $f_a$  appliqué sur  $\Delta m_i$  (voir § 3.2) ;
- variation de la correction de poussée de l'air  $\Delta m_{bc}$  (voir § 3.3) ;
- variation de la dérive de la balance entre « l'autozéro » initial et les « autozéros » consécutifs  $\Delta m_d$  (voir § 3.3) ;
- erreur associée au temps de réaction de la balance  $c_v$  (voir § 3.4).

La masse perdue  $m$  s'exprime donc selon l'équation (1) :

$$m = [\Delta m_i \cdot f_a + \Delta m_{bc} - \Delta m_d] + c_v \quad (1)$$

Le débit massique  $q_m$  (en  $\text{mg}\cdot\text{s}^{-1}$ ) correspond à la masse perdue  $m$  (en mg) divisée par l'intervalle de temps  $t_d$  (en s).

L'analyse du processus de mesure conduit à ajouter des composantes d'incertitude supplémentaires :

- la répétabilité de la mesure du débit massique  $c_{\text{rép}}$  (voir § 3.6) ;
- l'effet du temps  $c_{\text{temps}}$  (voir § 3.7) ;
- le taux de fuite de gaz sur toute la ligne y compris la caténaire  $c_{\text{fuite}}$  (voir § 3.8).

Tableau 1  
Vérification des masses.

Masse étalon (mg)	Incertitude masse étalon (mg)	Erreur de justesse (mg)	Écart type de répétabilité (mg)	EMT (mg)	EMT (%)	Débit (mg·s <sup>-1</sup> )
999,996	0,030	0,096	0,032	0,2	0,020	0,2
2 000,015	0,040	0,095	0,073	0,3	0,015	0,2–2
5 000,109	0,050	0,369	0,051	0,6	0,012	2–20
10 000,096	0,060	0,516	0,051	0,7	0,007	20–50
20 000,174	0,080	0,994	0,080	1,3	0,007	50–200

Ces composantes associées à une correction nulle ne modifient pas la valeur du débit massique ; par contre, ils augmentent son incertitude associée. En tenant compte de l'ensemble des composantes, l'équation complète du débit massique est :

$$q_m = \frac{m}{t_d} + c_{\text{rép}} + c_{\text{temps}} + c_{\text{fuite}} \quad (2)$$

Les paragraphes suivants présentent les estimations des incertitudes types associées à ces composantes.

### 3.2. Masse brute avec facteur d'ajustage $\Delta m_i \cdot f_a$

L'incertitude associée à  $\Delta m_i$  comprend la justesse de la balance, sa résolution et la répétabilité des pesées de l'ensemble « réservoir + régulateur + caténaire » pour évaluer l'influence des liaisons mécaniques sur la masse indiquée.

La justesse de la balance a peu d'influence sur l'incertitude finale. L'incertitude associée est déduite d'une erreur maximale tolérée (EMT) qui dépend de la masse pesée. Une vérification périodique est réalisée en pesant cinq masses étalons correspondant aux différentes masses perdues. Chaque pesée est répétée cinq fois et l'on détermine l'erreur de justesse et la répétabilité. Lorsque ces composantes sont cohérentes avec l'EMT, les masses perdues ne sont pas corrigées de l'erreur de justesse.

Un exemple de vérification est présenté dans le tableau 1.

L'incertitude associée à la justesse de la masse perdue est issue de cette EMT. En supposant une loi uniforme, l'incertitude type est :

$$u(\Delta m_i) = \frac{EMT}{\sqrt{3}}$$

Dix pesées successives de l'ensemble « réservoir + régulateur + caténaire » ont été effectuées. L'écart type calculé est de 0,3 mg.

Le facteur d'ajustage du calibrage externe de la balance à 2 kg est calculé en utilisant l'équation simplifiée suivante :

$$f_a = 1 + \left( \frac{c_e - m_e}{m_e} \right), \quad (3)$$

avec  $m_e$  la masse de référence affichée par la balance et  $c_e$  sa masse conventionnelle donnée dans le certificat d'étalonnage et égale à (2,015 064 0 ± 0,000 003 8) kg.

Un ajustage de la balance avec la masse de référence de 2 kg est régulièrement réalisé. Le facteur d'ajustage est compris entre 1,000 00 et 1,000 03.

L'incertitude associée à  $f_a$  comprend la répétabilité des pesées de la masse de référence et son incertitude d'étalonnage. L'incertitude sur le facteur d'échelle, de l'ordre de 10<sup>-6</sup>, est négligeable.

### 3.3. Corrections $\Delta m_{bc}$ et $\Delta m_d$

Les équations permettant de calculer  $m_{bc}$  et  $m_d$  sont détaillées dans une note technique du constructeur [3]. Les incertitudes sur les variations de correction de poussée de l'air, sur le volume externe de l'ensemble « réservoir de gaz + détendeur » et de dérive de la balance proviennent principalement d'erreurs systématiques liées aux capteurs de pression, température et humidité relative (HR) utilisés pour le calcul de la masse volumique de l'air humide. Avec des incertitudes types sur  $p$ ,  $T$  et  $h$  respectivement de l'ordre de 100 Pa, 0,1 °C et 5 % HR, l'incertitude type sur  $\Delta m_{bc}$  est d'environ 0,3 mg et celle sur  $\Delta m_d$  de 0,9 mg pour le réservoir de 1,5 L.

### 3.4. Erreur associée au temps de réaction de la balance $c_v$

La balance fonctionnant en régime dynamique, son temps (délai) de réaction influence la masse de gaz perdue par le réservoir. La fréquence d'échantillonnage de la balance est de 23 mesures par seconde, ce qui correspond à une mesure de masse toutes les 0,043 5 s. L'erreur variant avec le débit massique généré n'est pas corrigée ( $c_v = 0$ ) et en supposant un facteur d'élargissement égal à  $2\sqrt{3}$ , l'incertitude type associée est de 0,012 5 ×  $q_m$ .

### 3.5. Temps $t_d$

L'incertitude associée à l'intervalle de temps dépend de la dérive de l'horloge ( $U = 0,000 2$  s associée à une loi uniforme) et de la justesse de l'horloge entre 0 et 720 h ( $U = 0,003 2$  % associée à une loi normale déterminée par un étalonnage). Il en résulte l'incertitude type suivante :

$$u(t_d) = 1,2 \times 10^{-4} \text{ s} + 1,6 \times 10^{-5} t_d \quad (4)$$

Tableau 2

Incertitude type sur le débit massique de référence.

Débit massique (mg·s <sup>-1</sup> )	Incertitude type (mg·s <sup>-1</sup> )	Incertitude type relative (%)	Incertitude type linéarisée (%)
0,208 62	0,000 11	0,054	0,102
0,521 39	0,000 15	0,029	0,059
1,042 64	0,000 18	0,017	0,044
1,563 82	0,000 29	0,019	0,040
2,084 80	0,000 50	0,024	0,037
5,197 65	0,000 58	0,011	0,033
10,393 6	0,001 3	0,012	0,031
15,587 5	0,002 2	0,014	0,031
20,8550	0,005 5	0,027	0,031
52,1372	0,009 5	0,018	0,030
104,247	0,013	0,013	0,030
156,493	0,029	0,019	0,030
208,613	0,042	0,020	0,030

### 3.6. Répétabilité de la mesure du débit massique $c_{\text{rép}}$

La répétabilité a été estimée pour 15 valeurs de débit avec trois déterminations successives du débit massique. L'écart type varie de  $4,2 \times 10^{-5} \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  pour un débit de  $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  (soit 0,021 %) à  $2,5 \times 10^{-2} \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  à  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  (soit 0,013 %).

### 3.7. Effet du temps $c_{\text{temps}}$

Des mesures de débit ont été réalisées sur une période de 3 mois. L'influence du temps, statistiquement significative, est estimée par un écart type. Il varie de  $8 \times 10^{-5} \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  pour un débit de  $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  (soit 0,040 %) à  $3,0 \times 10^{-3} \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  pour un débit de  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  (soit 0,002 %).

### 3.8. Taux de fuite $c_{\text{fuite}}$

Le taux de fuite du gaz a été analysé sur une période de huit heures. Au maximum, il atteint  $1,1 \times 10^{-4} \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ . Pour tous les débits, le taux de fuite n'est pas corrigé,  $c_{\text{fuite}} = 0$ . L'incertitude associée est évaluée en supposant une loi uniforme,  $u(c_{\text{fuite}}) = 6 \times 10^{-5} \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ .

### 3.9. Incertitude finale sur le débit massique

L'incertitude sur le débit massique est évaluée avec la loi de propagation des incertitudes [4] appliquée à la relation (2). Comme les coefficients de sensibilité sont égaux à 1, pour chacun des facteurs correctifs, à  $\frac{q_m}{m}$  pour  $m$  et à  $\frac{q_m}{t_d}$  pour  $t_d$ , et que les composantes d'incertitude sont supposées indépendantes, l'incertitude de  $q_m$  est obtenue par :

$$u^2(q_m) = \left[ \frac{q_m \cdot u(m)}{m} \right]^2 + \left[ \frac{q_m \cdot u(t_d)}{t_d} \right]^2 + u^2(c_{\text{fuite}}) + u^2(c_{\text{rép}}) + u^2(c_{\text{temps}}) \quad (5)$$

Les résultats sont présentés dans le tableau 2.

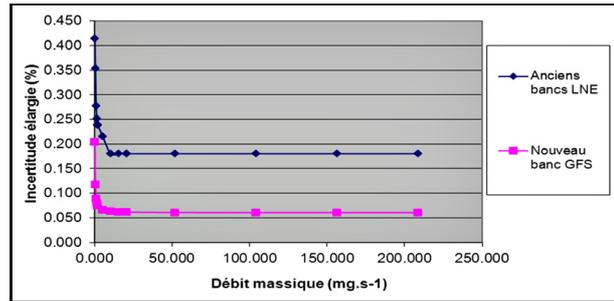


Fig. 3. – Incertitude relative associée aux bancs d'étalonnage jusqu'à  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Pour les débits au-dessus de  $50 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ , le facteur d'incertitude prépondérant est  $\frac{m}{t_d}$ . Pour les débits inférieurs, la répétabilité ou l'effet temps peuvent être prépondérants. Pour tous les débits, la composante  $u(c_{\text{fuite}})$  est négligeable.

### 3.10. Incertitude linéarisée du débit massique

Par commodité, une modélisation de l'incertitude en fonction du débit et applicable à l'ensemble du domaine a été recherchée. La droite de régression est estimée sur les 13 valeurs de débit entre  $0,2 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  à  $200 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et ses coefficients sont modifiés pour englober toutes les incertitudes associées à l'ensemble des points. La droite modifiée est la suivante :

$$u(q_m) = 1,5 \times 10^{-4} \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1} + 3,0 \times 10^{-4} q_m \quad (6)$$

L'incertitude linéarisée est reportée dans le tableau 2. Elle surestime largement l'incertitude telle qu'elle a été calculée, sauf à  $20 \text{ mg}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ce phénomène s'explique par l'étendue des débits représentés et par une évolution non monotone de l'incertitude dans cette plage. Comme ce modèle linéaire donne des incertitudes réduites d'un facteur 2 à 3 par rapport à celles des anciens bancs (fig. 3), il n'a pas été envisagé d'utiliser un autre modèle.

## 4. Incertitude d'étalonnage d'un débitmètre de type Molbloc

Les débitmètres de type Molbloc sont étalonnés en débit massique ou en débit volumique, avec de l'azote ou de l'air sec.

Le débitmètre à étalonner (DUT) est installé en aval du banc de référence GFS et en amont ou en aval du régulateur de débit massique (RDM), comme indiqué sur la figure 1.

La procédure d'étalonnage comporte un cycle de cinq points de mesure minimum (10 %, 25 %, 50 %, 75 %, 100 %) avec trois déterminations successives par point.

Les résultats habituellement enregistrés comprennent pour chaque point de débit :

- le débit massique de référence issu du banc (exprimé en  $\text{mg}\cdot\text{s}^{-1}$ ) ;

Tableau 3  
Exemple d'étalonnage d'un Molbloc (DUT).

Débit de référence		Débit (DUT) mL·min <sup>-1</sup>	Correction mL·min <sup>-1</sup>	Écart type mL·min <sup>-1</sup>
mg·s <sup>-1</sup>	mL·min <sup>-1</sup>			
20,855	1 000,73	1 000,0	0,73	0,11
20,852	1 000,61	1 000,0	0,61	
20,857	1 000,83	1 000,0	0,83	
52,143	2 502,06	2 500,0	2,06	0,39
52,156	2 502,73	2 500,0	2,73	
52,142	2 502,05	2 500,0	2,05	
104,29	5 004,3	5 000,0	4,25	0,29
104,29	5 004,5	5 000,0	4,52	
104,28	5 004,0	5 000,0	3,95	
156,43	7 506,5	7 501,0	5,47	0,92
156,40	7 504,7	7 501,0	3,69	
156,40	7 505,0	7 500,0	5,01	
208,56	10 007,7	10 001,0	6,69	1,59
208,59	10 009,1	10 000,0	9,10	
208,53	10 006,1	10 000,0	6,11	

- le débit volumique de référence ramené aux conditions normales (en mL·min<sup>-1</sup>, à 0 °C et à 1 013,25 hPa);
- le débit volumique indiqué par le DUT ramené aux conditions normales (en mL·min<sup>-1</sup>, à 0 °C et à 1 013,25 hPa);
- la correction à ajouter au débit volumique indiqué par le DUT (en mL·min<sup>-1</sup>, à 0 °C et à 1 013,25 hPa);
- l'écart type des erreurs pour les trois mesures simultanées (en mL·min<sup>-1</sup>, à 0 °C et à 1 013,25 hPa).

Un exemple d'étalonnage d'un Molbloc entre 1 L·min<sup>-1</sup> et 10 L·min<sup>-1</sup> d'azote est présenté dans le tableau 3.

#### 4.1. Méthode d'évaluation de la fonction d'étalonnage

Selon le VIM [5], l'étalonnage d'un instrument de mesure consiste à estimer une fonction qui permet de convertir une indication de l'instrument en un résultat de mesure. Dans cet exemple, elle permet de passer d'un débit lu sur le DUT à un débit corrigé de l'erreur de justesse.

Fondamentalement, deux types de modèles sont possibles : le modèle de la correction et le modèle du débit corrigé. Dans le modèle de la correction, la correction de justesse de l'instrument est exprimée en fonction du débit lu. Puis, l'utilisateur ajoutera cette correction au débit lu. Dans le modèle du débit corrigé, le débit de référence est exprimé en fonction du débit lu. L'utilisateur utilisera directement la fonction d'étalonnage. Des précisions sur ces deux modèles sont données dans la référence [6]. Dans cet article, nous privilégions le modèle du débit corrigé. Nous estimons dans les paragraphes suivants, les incertitudes associées à chacun des deux débits.

#### 4.2. Incertitude associée au DUT

La répétabilité des écarts provient du DUT et du banc de référence. Comme il est difficile d'identifier la part de chacun, la répétabilité est affectée au débit de référence connu pour être plus instable. Ainsi, l'incertitude associée au DUT provient uniquement de sa résolution.

Dans l'exemple précédent, la résolution est de 0,1 mL·min<sup>-1</sup>. Suivant l'usage, l'incertitude type associée est évaluée en supposant une loi uniforme sur la demi-résolution; soit 0,03 mL·min<sup>-1</sup>.

#### 4.3. Incertitude associée au débit volumique de référence

Lorsque la lecture sur le DUT est exprimée en débit volumique dans les conditions normales (indiquées « n », valeurs déterminées à la température de 0 °C et à la pression de 1 013,25 hPa), le débit massique de référence est converti en débit volumique dans les mêmes conditions à l'aide de l'équation :

$$q_v = \frac{q_m}{\rho_n} \quad (7)$$

$$\text{où } \rho_n = \frac{1}{Z_n} \times \frac{M}{R} \times \frac{p_n}{T_n} \quad (8)$$

avec, pour l'azote :

- $Z_n$  : facteur de compressibilité de l'azote estimé au moyen de l'équation « AGA8 » à  $0,999\ 60 \pm 0,000\ 12$  [7];
- $M$  : masse molaire de l'azote estimée à  $(28,013\ 64 \pm 60 \times 10^{-5})$  g·mol<sup>-1</sup> [8];
- $R$  : constante molaire des gaz égale à  $(8,314\ 472 \pm 30 \times 10^{-6})$  J·mol<sup>-1</sup>·K<sup>-1</sup> [9].

La masse volumique de l'azote  $\rho_n$  est estimée à 1,250 33 g·L<sup>-1</sup> avec une incertitude élargie de 0,000 20 g·L<sup>-1</sup>.

Pour passer du débit massique au débit volumique (mg·s<sup>-1</sup> en mL·min<sup>-1</sup>), un facteur sans dimension et sans incertitude de 60 000 résultant du passage de la seconde à la minute, d'une part, et du litre au millilitre, d'autre part, est introduit dans la formule (7) qui devient :

$$q_v = \frac{q_m}{\rho_n} \times 60\ 000 \quad (9)$$

L'incertitude sur le débit volumique de référence provient de trois sources :

- le débit massique de référence  $q_m$ ;
  - la masse volumique de l'azote  $\rho_n$ ;
  - la répétabilité des écarts.
- (a) l'incertitude due au débit massique de référence est évaluée avec la formule suivante :

$$u(q_v)_{q_m} = u(q_m) \times \frac{60\ 000}{\rho_n}$$

Tableau 4

Composantes d'incertitude associées au débit volumique d'azote.

Débit volumique mL/min	Débit massique mL·min <sup>-1</sup>	Masse volumique de l'azote mL·min <sup>-1</sup>	Répétabilité mL·min <sup>-1</sup>	Incertitude type sur $q_v$ mL·min <sup>-1</sup>
1 000,73	0,31	0,08	0,11	0,33
2 502,06	0,76	0,20	0,39	0,87
5 004,3	1,5	0,40	0,29	1,6
7 506,5	2,3	0,60	0,92	2,5
10 007,7	3,0	0,80	1,6	3,5

En utilisant l'incertitude linéarisée du débit massique (6) elle devient :

$$u(q_v)_{q_m} = 1,5 \times 10^{-4} \times \frac{60\,000}{\rho_n} + 3 \times 10^{-4} q_v \quad (10)$$

(b) l'incertitude due à la masse volumique du gaz est évaluée avec la formule suivante :

$$u(q_v)_{\rho_n} = \frac{u(\rho_n)}{\rho_n} q_v = 8 \times 10^{-5} q_v \quad (11)$$

(c) l'écart type est estimé sur les trois écarts issus de la répétition des mesures.

Ces trois composantes d'incertitude, supposées indépendantes, sont sommées quadratiquement. Le tableau 4 présente l'incertitude obtenue pour la première mesure de chaque point de débit.

Le passage du débit massique au débit volumique induit une légère dégradation de l'incertitude. Le résultat obtenu dans le cas de l'azote ne peut pas être généralisé à tous les gaz.

#### 4.4. Covariances des valeurs de débit volumique

La covariance des estimations de deux grandeurs  $Y_1$  et  $Y_2$  peut provenir d'une grandeur d'entrée commune à  $Y_1$  et  $Y_2$  ou d'une grandeur d'entrée de  $Y_1$  qui est corrélée à une grandeur d'entrée de  $Y_2$ .

Dans le cas des débits volumiques, la grandeur commune à tous les débits est la masse volumique de l'azote  $\rho_n$  et les grandeurs corrélées sont les débits massiques de référence.

Les débits massiques de référence sont corrélés car ils ont été générés avec le même banc d'étalonnage. Hormis la répétabilité, tous les termes de l'équation (2) entrent dans le calcul de la covariance. En particulier, l'effet temps estimé sur une période de 3 mois apparaît comme une erreur systématique lorsque l'on considère les débits à un moment donné.

Enfin, l'opération de linéarisation de l'incertitude (voir § 3.10) introduit une composante d'incertitude commune dont la contribution au budget d'incertitude est élevée.

Les covariances ont été évaluées en utilisant l'expression simple suivante :

$$u(q_{mi}, q_{mj}) = u(q_{mi}) \times u(q_{mj}) \times r(q_{mi}, q_{mj}),$$

où  $r(q_{mi}, q_{mj})$  est le coefficient de corrélation linéaire dont la valeur varie entre  $-1$  et  $1$ . Ici, il est supposé que ce coefficient a une valeur supérieure à  $0,7$ .

La covariance de deux débits volumiques, notés  $q_{vi}$  et  $q_{vj}$ , due aux débits massiques est calculée en utilisant l'équation (9) :

$$\begin{aligned} u(q_{vi}, q_{vj})_{q_{mi}, q_{mj}} &= \left[ 1,5 \times 10^{-4} \times \frac{60\,000}{\rho_n} + 3 \times 10^{-4} q_{vi} \right] \\ &\times \left[ 1,5 \times 10^{-4} \times \frac{60\,000}{\rho_n} + 3 \times 10^{-4} q_{vj} \right] \\ &\times r(q_{mi}, q_{mj}) \end{aligned}$$

Par ailleurs, l'incertitude sur la masse volumique de l'azote engendre une covariance d'expression :

$$u(q_{vi}, q_{vj})_{\rho_n} = q_{vi} \cdot q_{vj} \cdot \left( \frac{u(\rho_n)}{\rho_n} \right)^2$$

La covariance totale des deux débits volumiques ( $q_{vi}, q_{vj}$ ) est :

$$u(q_{vi}, q_{vj}) = u(q_{vi}, q_{vj})_{q_{mi}, q_{mj}} + u(q_{vi}, q_{vj})_{\rho_n}$$

La matrice de variances-covariances des débits volumiques est évaluée et utilisée dans la méthode statistique d'estimation de la fonction d'étalonnage.

#### 4.5. Estimation de la fonction d'étalonnage

Comme les deux variables (débit lu sur le DUT et débit de référence) comportent des incertitudes, la fonction est estimée avec la méthode des GLS-GGMR [10]. Son expression est la suivante :

$$q_{v,\text{étal}} = 1,000\,8 q_v \quad (12)$$

et l'incertitude type associée est :

$$u(q_{v,\text{étal}}) = 3,13 \times 10^{-4} q_v$$

Les calculs ont été réalisés avec le logiciel LNE-RegPoly [11] développé au LNE.

Initialement, nous avons évalué un modèle avec une constante :  $q_{v,\text{étal}} = -5,965\,4 \times 10^{-2} + 1,000\,82 \cdot q_v$ . L'incertitude type sur la constante de  $8,77 \times 10^{-2}$  indique que celle-ci n'est pas significative. Mathématiquement, son retrait du modèle augmente la valeur de la pente et diminue son incertitude. En pratique, le gain est un modèle plus simple et plus représentatif des données.

Les débits calculés avec la fonction (12) sont présentés au tableau 5.

Tableau 5

Prévision du débit volumique avec la fonction d'étalonnage.

Débit volumique lu (DUT) (mL·min <sup>-1</sup> )	Débit volumique estimé (mL·min <sup>-1</sup> )	Incertitude type sur le débit estimé (mL·min <sup>-1</sup> )
1 000,0	1 000,8	0,31
2 500,0	2 502,0	0,78
5 000,0	5 004,0	1,6
7 501,0	7 507,1	2,4
10 000,0	10 008,1	3,1

Les débits estimés avec la fonction d'étalonnage sont cohérents avec les mesures et l'expérience du laboratoire. Leurs incertitudes associées, du même ordre de grandeur que les incertitudes des débits mesurés, montrent que la méthode propage correctement ces incertitudes. Ainsi le processus d'étalonnage d'un débitmètre laminaire de type Molbloc est validé.

## 5. Comparaison interlaboratoire

Pour valider le nouveau banc, le LNE a organisé une comparaison internationale. Cette comparaison s'est déroulée de manière informelle avec des participants très expérimentés et reconnus au niveau international dans le domaine : trois laboratoires nationaux de métrologie (NIST, PTB et CMI) et la société Fluke qui a fourni les étalons de transfert et le matériel connexe. Les mesures de débit ont été effectuées de début 2011 à fin 2012. Cette comparaison internationale a fait l'objet d'une publication [12] et seuls quelques éléments importants sont rappelés ci-après.

### 5.1. Étalons de transfert

Les étalons de transfert étaient trois débitmètres laminaires de type Molbloc de 2 mg·s<sup>-1</sup>, 20 mg·s<sup>-1</sup> et 200 mg·s<sup>-1</sup> d'azote pleine échelle formaient les étalons de transfert. Le système électronique de type Molbox utilisé pour les mesures de pression, de température et pour le calcul du débit était joint aux étalons de transfert pour s'affranchir de l'incertitude associée à l'instrumentation spécifique de chaque laboratoire.

Chaque débitmètre de transfert a été utilisé à 10 %, 25 %, 50 %, 75 %, et 100 % de son étendue de mesure. Par conséquent, cette comparaison couvrait les débits compris entre 0,2 mg·s<sup>-1</sup> et 200 mg·s<sup>-1</sup>.

Les étalons de transfert ont été étalonnés en position aval, c'est-à-dire avec la pression atmosphérique en sortie. Cette position permet d'augmenter la différence de pression de 60 % dans le débitmètre par rapport à une position amont (par exemple, 250 kPa à l'entrée du débitmètre), ce qui contribue à obtenir les incertitudes les plus faibles.

### 5.2. Étalons de référence des laboratoires participants

Deux laboratoires (NIST et PTB) ont étalonné les débitmètres de transfert avec leurs étalons de référence volumétriques et les deux autres, avec leurs étalons de référence gravimétriques (CMI et LNE).

Le NIST a utilisé :

- son étalon de 34 L selon la méthode Pression-Volume-Température-temps (*PVTt*) [13,14], avec une incertitude élargie de 0,025 % ;
- son étalon de 34 L à l'aide de la méthode appelée *Rate of Rise* (RoR) et basée sur le même principe que la méthode *PVTt*, avec une incertitude élargie de 0,08 % ;
- son étalon de travail de débit (WGFS) de type « venturi-tuyère » utilisé en écoulement critique [15], avec une incertitude élargie de 0,10 %.

La PTB a utilisé :

- son étalon volumétrique avec un piston à joint de mercure selon la méthode Pression-Volume-Température-temps (*PVTt*), avec une incertitude élargie de 0,25 % ;
- son étalon à double piston [16], avec une incertitude élargie de 0,08 %.

Le CMI a utilisé son banc de référence qui est semblable à celui du LNE, avec une incertitude élargie de 0,11 %.

### 5.3. Protocole de la comparaison

Dans un souci d'homogénéité de présentation des résultats de mesure et par commodité d'usage, les débits mesurés sont des débits volumiques  $q_v$  variant entre 10 mL·min<sup>-1</sup> (0,2 mg·s<sup>-1</sup>) et 10 000 mL·min<sup>-1</sup> (200 mg·s<sup>-1</sup>). La comparaison a porté sur les valeurs de débit suivantes : (10, 25, 50, 75, 100, 250, 500, 750, 1 000, 2 500, 5 000, 7 500 et 10 000) mL·min<sup>-1</sup>. Pour chaque valeur de débit, les laboratoires participants ont choisi un nombre de mesures ( $n$ ) en fonction de la méthode d'étalonnage utilisée. Le nombre de mesures a varié entre 3 et 22.

Pour estimer la dérive des étalons de transfert sur la durée de la comparaison, le LNE les a étalonnés avant et après la comparaison. L'écart entre les deux séries de mesure n'a pas justifié l'application d'une correction mais une incertitude sur la dérive de l'étalon de transfert a été ajoutée aux incertitudes sur la comparaison ; elle a été évaluée à 0,042 % ( $k = 2$ ).

Pour chaque laboratoire, l'écart relatif ( $x_i$ ) entre le débit de l'étalon de transfert et le débit de référence est calculé avec son incertitude associée  $U(x_i)$ . Cette incertitude élargie comprend l'incertitude de l'étalon de référence du laboratoire, la répétabilité ou la reproductibilité des  $n$  mesures réalisées et l'incertitude introduite par l'étalon de transfert.

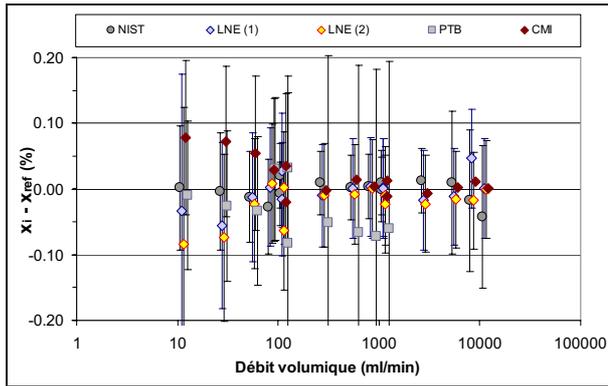


Fig. 4. – Représentation des résultats de la comparaison sur une échelle logarithmique entre 10 mL·min<sup>-1</sup> et 10 000 mL·min<sup>-1</sup>.

Tableau 6

Résultats du LNE entre 10 mL·min<sup>-1</sup> et 10 000 mL·min<sup>-1</sup>.

Débit volumique mesuré (mL·min <sup>-1</sup> )	Différence relative $x_{\text{me}} - x_{\text{réf}}$ (%)	Incertitude élargie $U(x_{\text{me}})$ (%)
10,00	-0,034	0,21
25,00	-0,055	0,13
50,00	-0,012	0,10
75,00	0,003	0,09
100,0	0,028	0,09
100,00	-0,016	0,09
250,00	-0,010	0,08
500,00	0,001	0,08
750,00	0,003	0,07
1 000,0	0,002	0,07
1 000,0	0,000	0,08
2 500,0	-0,017	0,08
5 000,0	-0,011	0,07
7 500,7	0,046	0,07
10 000	0,000	0,08

#### 5.4. Résultats

La valeur de référence de la comparaison ( $x_{\text{réf}}$ ) en chaque point de débit a été calculée à partir de l'équation (1) de [15] et correspond à un écart relatif moyen pondéré par des résultats des laboratoires. L'incertitude associée  $U(x_{\text{réf}})$  ( $k = 2$ ) a été obtenue avec l'équation (2) de [17].

La figure 4 présente, pour chaque valeur de débit volumique comparée, l'écart relatif entre le résultat de chaque laboratoire ( $x_i$ ) et la valeur de référence de la comparaison ( $x_{\text{réf}}$ ) et ce pour les trois étalons de transfert. Les barres verticales représentent l'incertitude élargie  $U(x_i)$  donnée par chaque participant. Le LNE ayant réalisé deux étalonnages, il apparaît deux fois sur le graphique mais ne contribue qu'une fois dans la détermination de la valeur de référence et de son incertitude.

Les résultats du LNE sont détaillés dans le tableau 6. Pour chaque débit volumique mesuré, la différence relative entre la valeur du LNE ( $x_{\text{me}}$ ) et la valeur de référence ( $x_{\text{réf}}$ ) est inférieure à l'incertitude élargie calculée avec l'équation (6). Ces résultats confortent l'évaluation de l'incertitude de mesure du LNE.

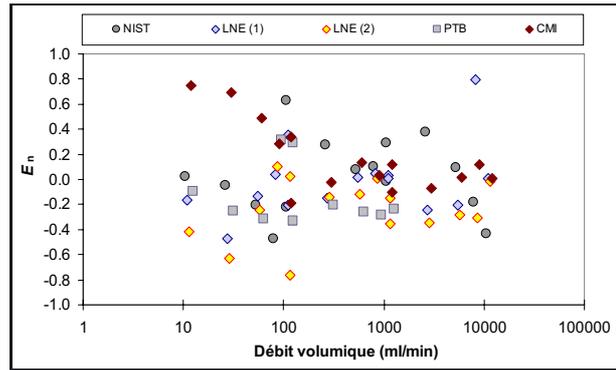


Fig. 5. – Degrés d'équivalence normalisés des quatre laboratoires en fonction du débit volumique.

La figure 5 présente le degré d'équivalence normalisé  $E_n$  des quatre laboratoires en utilisant l'expression établie dans l'annexe C de [10] :

$$E_n = \frac{x_i - x_{\text{réf}}}{\sqrt{U_{x_i}^2 + U_{x_{\text{réf}}}^2}}$$

Pour un étalon de transfert de très bonne stabilité, une valeur de  $|E_n|$  inférieure à 1 indique un résultat compris dans les limites d'incertitude du laboratoire participant. Lors de cette comparaison, toutes les valeurs étaient inférieures ou égales à 0,8 et ont montré que les résultats peuvent être qualifiés de satisfaisant pour tous les participants.

L'incertitude linéarisée du débit massique précédemment calculée est ainsi validée et conservée pour chaque point de débit.

#### 6. Conclusion

La qualification métrologique du nouveau banc de référence mis en place en débitmétrie des gaz a confirmé les performances métrologiques attendues. Ce banc permet de générer et de mesurer des débits massiques compris entre 0,2 mg·s<sup>-1</sup> et 200 mg·s<sup>-1</sup> avec une incertitude élargie ( $k = 2$ ) de :

$$U(q_m) = 0,000\ 3\ \text{mg}\cdot\text{s}^{-1} + 0,000\ 60 \times q_m$$

Les résultats de la comparaison internationale menée par le LNE montrent l'équivalence métrologique des quatre laboratoires avec des degrés d'équivalence compris dans un intervalle de  $\pm 0,8\%$  et une incertitude élargie comprise entre 0,06 % et 0,2 %. Cette comparaison a permis de valider l'incertitude élargie associée au débit massique de référence au LNE.

Les autres bancs gravimétriques déjà existants au LNE restent utilisés, sans changement, sur des étendues de mesure complémentaires à celle du nouveau banc, et avec les incertitudes déclarées dans la base de données (CMC- *Calibration and Measurement Capabilities*) du CIPM-MRA (Arrangement de reconnaissance mutuelle

du CIPM) consultable sur le site internet du BIPM (Bureau international des poids et mesures). Les possibilités actuelles d'étalonnage de débitmètres massiques au LNE sont donc :

Débit massique, $q_m$ (en $\text{mg}\cdot\text{s}^{-1}$ )	Incertitude élargie ( $k = 2$ ) sur $q_m$
de 0,03 à 0,2	$0,000\ 03\ \text{mg}\cdot\text{s}^{-1} + 0,004 \times q_m$
0,2 et 200	$0,000\ 3\ \text{mg}\cdot\text{s}^{-1} + 0,000\ 60 \times q_m$
de 200 à 2 200	$0,1\ \text{mg}\cdot\text{s}^{-1} + 0,002 \times q_m$

Des travaux d'amélioration sont en cours pour les débits inférieurs à  $0,2\ \text{mg}\cdot\text{s}^{-1}$  et un processus de qualification similaire sera entrepris avec comme objectif de diviser par 2 ou 3 l'incertitude actuelle dans cette gamme de débits.

### Références

- [1] BARBE J., COUETTE J., PICAULT J.-M. et MARSCHAL A., « Traçabilité des mélanges de gaz étalons préparés par méthode gravimétrique dynamique », *Bulletin du BNM*, **120**, 2001, 17-26.
- [2] DELAJOU P., BAIR M., ROMBOUITS C. et GIRARD M., "A Primary Calibration System for the Support of High Performance Gas Flow Standards", *Proceedings of International Symposium on Fluid Flow Measurement*, Queretaro, Mexico, 2006, 6 p.
- [3] Note technique n° 6050TN09, "Typical measurement uncertainty in gas flow measured by GFS2102 Gravimetric Flow Standard", DH Instruments, 2006.
- [4] ISO/CEI GUIDE 98-3:2008, Uncertainty of measurement – Part 3: guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM :1995), 2008.
- [5] ISO/CEI GUIDE 99:2007, « Vocabulaire international de métrologie : Concepts fondamentaux et généraux et termes associés (VIM) ».
- [6] YARDIN C., CHERRADI H. et BARBE J., « Etalonnage d'un instrument de mesure selon la définition du VIM 2007. Application au cas d'un débitmètre du laboratoire de débitmétrie gazeuse du LNE », *Congrès international de métrologie*, France, 2011.
- [7] NF EN ISO 12213-2, « Gaz naturel – Calcul du facteur de compression – Partie 2 : Calcul à partir de l'analyse de la composition molaire ».
- [8] Tables IUPAC, *Pure Appl. Chem.*, **83**, 2, 2011, 359-396.
- [9] MOHR P.J, TAYLOR B.N. et NEWELL D.B., "CODATA recommended values of the fundamental physical constants:2006", *Rev. Mod. Phys.*, **80**, 2008.
- [10] Yardin C., « Estimer la droite d'étalonnage avec les moindres carrés généralisés et évaluer le résultat de mesure », *Revue française de métrologie*, **31**, 2012, 21-39.
- [11] <http://www.lne.fr/fr/logiciels/Regpoly/logiciel-etalonnage-regpoly.asp>.
- [12] ROMBOUITS C., BAIR M., BARBE J., WRIGHT J.D., KRAMER R. et KRAJICEK Z., "A Comparison of Primary Gas flow standards Spanning the range from 10 sccm  $\text{N}_2$  to 10 slm  $\text{N}_2$ ", *NCSL International Measure*, **9**, 4, 2014, 46-54.
- [13] WRIGHT J.D. et JOHNSON A.N., NIST Lowers Gas Flow Uncertainties to 0.025% or Less, *NCSL International Measure*, **5**, 2010, 30-39.
- [14] WRIGHT J.D., JOHNSON A.N., MOLDOVER M.R. et KLINE G.M., Gas Flowmeter Calibrations with the 34 L and 677 L PVT Standards, NIST Special Publication 250-63, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, Maryland, 18 novembre 2010.
- [15] WRIGHT J.D., KAYL J.-P., JOHNSON A.N. et KLINE G.M., Gas Flowmeter Calibrations with the Working Gas Flow Standard, NIST Special Publication 250-80, *National Institute of Standards and Technology*, Gaithersburg, MD, 23 novembre 2009.
- [16] KRAMER R., MICKAN B., DOPHEIDE D., Double Piston Prover Usable as Flowrate Comparator for Various Gases, *XVIII IMEKO World Congress Metrology for Sustainable Development*, Rio de Janeiro, Brazil, 17–22 septembre 2006.
- [17] COX M.G., "The Evaluation of Key Comparison Data", *Metrologia*, **39**, 2002, 589-595.

Article reçu le 16 février 2015, version révisée reçue le 27 juin 2016.