



PREAMBULE

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué de laboratoires de l'Ecole des Mines de Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches finalisées à la demande du Ministère chargé de l'environnement, sous la coordination technique de l'ADEME et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique supportés financièrement par la Direction des Préventions des Pollutions et des Risques du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique aux AASQA.

L'objectif principal du LCSQA est de participer à l'amélioration de la qualité des mesures effectuées dans l'air ambiant, depuis le prélèvement des échantillons jusqu'au traitement des données issues des mesures. Cette action est menée dans le cadre des réglementations nationales et européennes mais aussi dans un cadre plus prospectif destiné à fournir aux AASQA de nouveaux outils permettant d'anticiper les évolutions futures.

RESUME

Le TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) est un appareil de mesure très répandu au sein des réseaux de surveillance de la qualité de l'air. Il est capable de mesurer en continu la concentration massique des particules en suspension dans l'air (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$), ce qui le rend préférable à la méthode gravimétrique qui nécessite des analyses postérieures au prélèvement.

A l'heure actuelle, cet appareil est étalonné à l'aide de cales étalons raccordées au système international. Ces cales, de masses connues, permettent de vérifier aisément la constante d'étalonnage de l'appareil. Néanmoins, elles présentent deux inconvénients majeurs :

- ✓ leur masse est de l'ordre de 80 mg alors que les concentrations massiques de particules dans l'air ambiant sont plutôt de l'ordre de quelques μg .
- ✓ un tel étalonnage ne permet pas de prendre en compte tout le système de prélèvement en amont de la mesure de la masse.

Par conséquent, ceci montre qu'il serait plus judicieux d'étalonner le TEOM dans les conditions normales d'utilisation de l'appareil, ce que seul permettra l'introduction d'un aérosol par la canne d'aspiration.

L'objectif de cette étude est donc de réaliser une étude de faisabilité sur la mise en place d'un générateur de particules de référence destiné à étalonner cet appareil.

Les différentes recherches bibliographiques ont conduit à définir les caractéristiques du générateur d'aérosol à utiliser pour les essais en tenant compte des restrictions d'utilisation liées au TEOM. Par conséquent, le générateur d'aérosol qui convenait le mieux à notre étude était le PALAS Aerosol Generator GFG-1000, car :

- ✓ Le débit volumique est de l'ordre de grandeur du débit d'un TEOM et pourrait permettre de générer l'aérosol intégralement dans l'analyseur sans passer par une chambre de dispersion,
- ✓ Le débit massique est dans la gamme d'utilisation du TEOM.

Cet appareil génère des particules de suies artificielles à partir de graphite pur. La concentration est supérieure à 10^7 particules/ cm^3 ; la taille première des particules est de 3-5 nm ; en s'agglomérant, elles forment des particules de diamètre compris entre 20 et 150 nm.

Malheureusement, le constructeur n'a pas pu nous prêter un générateur de particules PALAS GFG-1000 en 2005, car il n'avait pas d'appareil disponible à cette époque.

Il a donc été décidé de réaliser des essais préliminaires avec le Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) du LNE. Le SMPS (modèle 3936 de chez TSI) est un appareil qui permet de générer des aérosols submicroniques dont le diamètre des particules est compris entre 3 et 1000 nm. La concentration peut varier de 1 à 10^8 particules/cm³.

Il s'agit d'un appareil répétable et reproductible.

Les premiers essais montrent que :

- ✓ l'utilisation d'une sphère de dilution avant l'introduction de l'aérosol dans le TEOM n'est pas une bonne méthode, car elle entraîne une dilution et des pertes de l'aérosol qui empêchent de collecter une masse suffisante pour être pesée,
- ✓ l'aérosol évolue en fonction du temps à l'intérieur de la sphère (agglomération des particules fines, dépôts des plus grosses particules vers le fond...), ce qui ne permet pas d'obtenir une bonne reproductibilité des essais.

Par conséquent, ces essais préliminaires semblent montrer que l'utilisation d'un générateur de particules dont le débit volumique est de l'ordre de grandeur de celui du TEOM (3 l/min) reste la meilleure solution.

De ce fait, un générateur de particules PALAS Aerosol Generator GFG-1000 a été commandé en fin d'année 2005 et des essais seront effectués avec cet appareil au cours de l'année 2006.

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION	1
2. LES PARTICULES.....	1
3. DESCRIPTION DU TEOM	2
3.1. Généralités	2
3.2. Caractéristiques	3
3.3. Améliorations apportées au TEOM	4
4. SYNTHESE DES ETUDES ANTERIEURES MENEES SUR L'ETALONNAGE DU TEOM.....	4
4.1. Introduction	4
4.2. Mise en œuvre de la méthode allemande	5
4.3. Utilisation d'un filtre de masse connue	6
4.4. Mise en œuvre de la méthode allemande pompe arrêtée	7
4.5. Introduction d'un aérosol	8
4.6. Etude de comparaison menée par l'université PARIS XII	10
5. RECHERCHE D'UN GENERATEUR D'AEROSOL ADAPTE AUX CONDITIONS DE L'ETUDE MENEES	11
5.1. Restrictions liées au TEOM	12
5.2. Caractéristiques du générateur	12
5.3. Chambre de dispersion	12
5.4. Conclusion	12
6. MISE EN ŒUVRE DU SMPS	13
6.1. Présentation du SMPS	13
6.2. Génération de l'aérosol	15
6.3. Paramètres importants	16
6.4. Problèmes rencontrés	17
6.5. Tests effectués sur le SMPS	17

7. ESSAIS PRELIMINAIRES MENES DANS LE CADRE DE L'ETALONNAGE DU TEOM.....	19
7.1. Mode opératoire	19
7.2. Premier montage	20
7.3. Second montage	22
7.4. Troisième montage	27
7.5. Introduction directe de l'aérosol dans le TEOM	29
8. CONCLUSION GENERALE	30
9. BIBLIOGRAPHIE	31
10. ANNEXES.....	31
10.1. Annexe 1 : Programme de travail 2005	32
10.2. Annexe 2 : Améliorations apportées au TEOM : le système SES et le système FDMS _	34
10.3. Annexe 3 : Photos du SSPD (Small-Scale Powder Disperser)	36
10.4. Annexe 4 : Photos des appareils du montage pour l'étalonnage du TEOM	37

1. INTRODUCTION

Le TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) est un appareil de mesure très répandu au sein des réseaux de surveillance de la qualité de l'air. Il est capable de mesurer en continu la concentration massique des particules en suspension dans l'air (en $\mu\text{g}/\text{m}^3$), ce qui le rend préférable à la méthode gravimétrique qui nécessite des analyses postérieures au prélèvement.

A l'heure actuelle, cet appareil est étalonné à l'aide de cales étalons raccordées au système international. Ces cales, de masses connues, permettent de vérifier aisément la constante d'étalonnage de l'appareil. Néanmoins, elles présentent deux inconvénients majeurs :

- ✓ leur masse est de l'ordre de 80 mg alors que les concentrations massiques de particules dans l'air ambiant sont plutôt de l'ordre de quelques μg ,
- ✓ un tel étalonnage ne permet pas de prendre en compte tout le système de prélèvement en amont de la mesure de la masse.

Par conséquent, ceci montre qu'il serait plus judicieux d'étalonner le TEOM dans les conditions normales d'utilisation de l'appareil, ce que seul permettra l'introduction d'un aérosol par la canne d'aspiration.

L'objectif de cette étude est donc de réaliser une étude de faisabilité sur la mise en place d'un générateur de particules de référence destiné à étalonner cet appareil.

NB : Le programme de travail défini initialement pour l'année 2005 est fourni en annexe 1.

2. LES PARTICULES

Les particules constituent un ensemble très hétérogène dont les caractéristiques physico-chimiques et/ou biologiques sont influencées par les sources d'émission ou par leur processus de formation dans l'atmosphère. Elles sont aujourd'hui principalement issues des véhicules automobiles (surtout de type diesel), des usines productrices d'énergie non nucléaire, des petites installations de combustion ainsi que des réactions chimiques entre gaz atmosphériques et l'humidité de l'air.

Les particules les plus grosses sont produites principalement par des phénomènes mécaniques (frottements, érosion...). De ce fait, on y trouve en quantité des éléments minéraux et organiques venant du sol et de la végétation. En quantité beaucoup plus faible, les particules biologiques (spores, pollens, bactéries...) se retrouvent aussi dans cette gamme granulométrique (10 à 100 μm).

Les particules les plus fines (moins de 0,1 μm) résultent de transformations gaz-solide dans l'atmosphère. Les particules dans la gamme 0,1 à 2 μm proviennent de la condensation de vapeurs peu volatiles et de phénomènes de coagulation. On y trouve en grande quantité des composés organiques. C'est dans cette gamme que se trouvent les particules émises par les pots d'échappement des véhicules à moteur, une fois les effluents condensés et coagulés dans l'air.

Leur taille détermine ainsi la vitesse de déposition des particules au sol. Les $PM_{2.5}$ (particules dont le diamètre est inférieur à $2,5\ \mu m$), très légères, peuvent rester en suspension dans l'air pendant des jours. Les PM_{10} (particules dont le diamètre est inférieur à $10\ \mu m$), quant à elles, restent en suspension pendant environ quelques heures, en l'absence de précipitations.

Cette taille influence aussi le degré de pénétration des particules dans les poumons. En raison de leur inertie, les particules de grande taille sont, pour leur plus grande part (de l'ordre de 40 %) précipitées sur la muqueuse de l'oropharynx puis dégluties. La voie de pénétration des constituants chimiques de ces particules est donc principalement digestive. Les PM_{10} se déposent surtout dans l'étage trachéo-bronchique, tandis que les particules fines vont atteindre en plus grand nombre les alvéoles.

Il n'y a pas de seuil en deçà duquel l'exposition aux particules est considérée comme sans danger pour la santé humaine. Les effets nuisibles touchent le cœur et les poumons et comprennent l'augmentation des cas d'hospitalisation et des décès attribuables aux maladies cardiorespiratoires, la diminution du fonctionnement des poumons chez les asthmatiques et les enfants, ainsi qu'un accroissement des cas de stress respiratoire. De plus, les particules décolorent et dégradent certains matériaux, nuisent à la végétation parce qu'elles entravent la photosynthèse en recouvrant la surface des feuilles et en altérant la chimie des plantes ou du sol, et réduisent la visibilité à l'extérieur en diffusant et en absorbant la lumière.

Au vu des effets sur la santé et l'environnement, il est donc très important de pouvoir mesurer précisément les concentrations en particules dans l'air.

3. DESCRIPTION DU TEOM

3.1. GENERALITES

3.1.1. Principe

Le TEOM sert à mesurer les concentrations massiques des aérosols dans l'air. Il fournit les résultats en temps réel et continu, ce qui fait de lui un appareil simple et pratique. Il est principalement constitué :

- ✓ d'une canne de prélèvement thermostatée au travers de laquelle passe l'aérosol,
- ✓ d'une microbalance à élément oscillant,
- ✓ d'un boîtier de commande, de contrôle, d'affichage et de stockage des données.



Figure 1 : Représentation du TEOM

La canne de prélèvement est maintenue à une température de 50°C, ce qui permet d'éviter les condensations de vapeurs contenues dans l'air prélevé et donc de fausser les résultats. Le filtre déposé sur le système oscillant recueille les particules de l'air prélevé. Ceci a pour effet d'augmenter la masse du système oscillant produisant une décroissance de la fréquence naturelle de vibration. En effet, la fréquence d'oscillation est directement liée à la masse d'aérosols déposée sur le filtre :

$$f^2 = K_0 / M$$

Avec : f la fréquence (s^{-1})
 K_0 la constante propre à l'élément oscillant ($g.s^{-2}$)
 M la masse (g)

De l'expression précédente, on en déduit l'expression de la variation de la masse :

$$\Delta m = K_0 [(1 / f_1^2) - (1 / f_0^2)]$$

Avec : Δm la masse collectée (g)
 f_0 la fréquence d'oscillation initiale (s^{-1})
 f_1 la fréquence après collection (s^{-1})
 K_0 la constante d'étalonnage (g/s^2)

3.1.2. Etalonnage

La constante d'étalonnage K_0 est obtenue par étalonnage à l'aide de particules d'aérosols de masse connue très précisément. Un kit fourni par l'utilisateur permet de calculer cette constante en utilisant une cale étalon ayant une masse de l'ordre de 80 mg, un étalonnage par an étant recommandé. Si l'écart est inférieur à 3%, il est inutile de modifier la constante K_0 . Sinon, il convient de vérifier le calcul par la formule précédemment donnée :

$$K_0 = \Delta m / [(1 / f_1^2) - (1 / f_0^2)]$$

Si le calcul confirme un écart supérieur à 3%, cela peut traduire un problème de fonctionnement sur le TEOM : élément oscillant endommagé, mauvais enregistrement de la fréquence...

Il est alors recommandé d'en avertir le fournisseur ; la modification de la constante d'étalonnage ne devra être effectuée que si aucun problème sur la microbalance n'a été détecté [1].

3.2. CARACTERISTIQUES

Le TEOM peut être utilisé dans une gamme de concentration allant de quelques micro grammes à quelques grammes par mètre cube d'air prélevé.

Sa limite de détection est d'environ 0,06 $\mu g/m^3$ pour une durée de prélèvement d'une heure. Le TEOM fonctionne à un débit de 3 l/min et peut être équipé d'une tête de prélèvement PM₁₀ ou PM_{2.5}.

3.3. AMELIORATIONS APPORTEES AU TEOM

La mise en œuvre de la méthode gravimétrique de référence a révélé l'existence d'un écart entre ses résultats et ceux fournis par le TEOM. Il a été montré que cet écart était maximum en hiver, ce qui met directement en cause la température de chauffage du TEOM [2] [3].

Système SES (Sample Equilibration System) (cf. annexe 2)

Le chauffage à 50 °C de la canne de prélèvement entraîne une sous-estimation de la part du TEOM concernant la concentration massique de l'aérosol réellement présent dans l'air. En effet, une température aussi haute provoque non seulement la perte en eau de l'aérosol collecté mais également la volatilisation de substances volatiles ou semi-volatiles, d'aérosols secondaires (nitrates, sulfates) contenus principalement dans la fraction PM_{2.5}. Il est possible de pallier ces problèmes en utilisant un système de déshumidification de l'échantillon avant la mesure, permettant ainsi d'abaisser la température de la canne à 30 °C.

Le système SES permet de diminuer l'écart entre la méthode gravimétrique de référence et le TEOM mais ne représente pas pour autant une solution idéale [2].

Système FDMS (Filter Dynamics Measurement System) (cf. annexe 2)

La présence d'une vanne séquentielle en amont de l'analyseur permet de diriger alternativement l'air prélevé vers :

- ✓ le filtre de collection de la microbalance équipée du système SES composé d'une membrane Nafion durant 6 minutes. La variation de masse permet de calculer la concentration en poussières non volatiles.
- ✓ un filtre de purge refroidi à 4°C durant 6 minutes permettant d'obtenir la concentration en poussières volatiles.

Ainsi, l'addition, toutes les 12 minutes, de ces deux concentrations donne la concentration totale en poussières.

Il est à noter que ce principe repose sur l'hypothèse que la masse d'air demeure inchangée durant tout le temps de la mesure [3].

4. SYNTHESE DES ETUDES ANTERIEURES MENEES SUR L'ETALONNAGE DU TEOM

4.1. INTRODUCTION

Une bibliographie approfondie sur les méthodes utilisées pour étalonner le TEOM a été réalisée.

L'outil de recherche principalement utilisé était Internet. Parmi les sites visités, les plus connus sont ceux du NIST, de TSI, de l'EPA, de TOPAS, de METAS, de Science direct...

Cette recherche a montré que très peu d'études ont été menées sur l'étalonnage des TEOM dans les autres pays, qui utilisent les cales étalons du commerce pour étalonner leurs TEOM. En effet, le TEOM est au cœur de nombreuses études de comparaison, mais pratiquement aucune ne porte sur la mise en place d'une méthode d'étalonnage, autre que celle mettant en oeuvre les cales étalons du commerce.

Le LNE et l'université Paris XII ont déjà travaillé sur la mise en place d'une méthode d'étalonnage du TEOM. Il convient d'en rappeler brièvement les principes et les résultats obtenus (cf. paragraphe ci-après).

4.2. MISE EN ŒUVRE DE LA METHODE ALLEMANDE

Cette méthode, décrite par Ms Fissan et Haradecki de l'Université Gerhard-Mercator de Duisburg, consiste à vérifier la bonne linéarité du TEOM ainsi qu'à comparer la masse réellement déposée et celle affichée par l'appareil [4][5].

4.2.1. Principe

Une solution de NaCl à laquelle on ajoute du propanol (liquide à faible tension de surface permettant une imprégnation totale sur le filtre) est déposée sur le filtre placé sur la microbalance. Pour éviter que des cristaux de sel ne se retrouvent sur les parois de la microbalance modifiant ainsi sa fréquence de vibration naturelle, la pompe est arrêtée lors du dépôt. La température de la microbalance (50°C) conduit à l'évaporation de la solution, la pompe peut alors être remise en marche.

Le TEOM affiche la quantité de NaCl restant sur le filtre. Cette valeur peut être comparée à la masse vraie de NaCl contenue dans la prise d'essai.

L'opération est renouvelée plusieurs fois.

4.2.2. Résultats

Les résultats ont montré que la linéarité est vérifiée avec des dépôts de 840 µg et 100 µg de NaCl.

Un exemple est donné en figure 2.

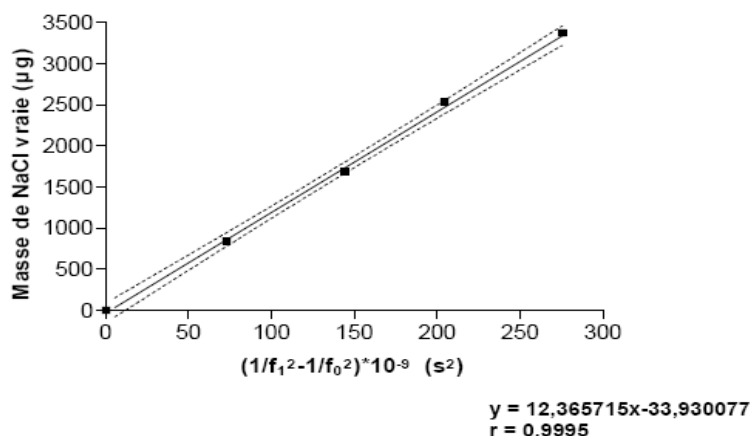


Figure 2 : Vérification de la linéarité pour des masses de 840 µg

Concernant la détermination de l'existence d'écarts entre la masse réellement déposée et celle affichée par le TEOM, l'incertitude élargie de reproductibilité est de $\pm 12\%$ pour les dépôts de 100 μg .

L'incertitude est donc très élevée. De plus, 100 μg représente encore une masse trop élevée si l'on considère que la concentration massique d'aérosols dans l'air est de l'ordre de quelques μg .

De même, on est loin des conditions réelles d'utilisation du TEOM à cause du fait que la pompe est arrêtée, et sa remise en marche entraîne une perturbation de la fréquence.

4.3. UTILISATION D'UN FILTRE DE MASSE CONNUE

L'étude réalisée avec la méthode allemande montre que l'arrêt de la pompe provoque des perturbations de la fréquence d'oscillation. Par conséquent, pour éviter d'arrêter la pompe, les dépôts ont été réalisés à l'extérieur, ce qui revient à créer des filtres étalons de masse connue.

Cette méthode a pour objectif de vérifier l'exactitude de la microbalance pour de faibles masses [4].

4.3.1. Principe

La fréquence f_0 est d'abord mesurée sur un filtre vierge. Puis, 90 μg de NaCl sont déposés sur le filtre qui est placé dans une étuve chauffée à 50°C afin de permettre l'évaporation de la solution.

Ensuite, le filtre peut être remplacé sur la microbalance.

4.3.2. Etude de la conservation de la fréquence initiale

Dans une première étape, il a fallu vérifier que la fréquence f_0 était conservée entre le moment de la mesure de cette fréquence (avant que le filtre ne soit retiré pour y effectuer le dépôt) et le moment où le filtre est remplacé sur la microbalance.

Pour cela la fréquence initiale de la microbalance avec un filtre vierge est mesurée. Le filtre est enlevé, puis remplacé sur la microbalance, la fréquence est à nouveau relevée. Et cette opération est répétée 10 fois de suite.

Les résultats obtenus montrent que les écarts-types sur la fréquence sont faibles mais induisent d'importantes erreurs sur la masse. En effet, lors de la remise en place du filtre sur la microbalance, il semblerait que l'opérateur exerce une pression sur ce filtre qui entraîne une modification de la longueur de l'ensemble et donc du centre de gravité.

Par conséquent, pour diminuer ces erreurs, la fréquence f_0 est mesurée sans filtre comme en mode étalonnage.

4.3.3. Résultats

Les résultats montrent des écarts très importants entre la masse vraie et la masse mesurée par le TEOM. De plus, de forts écarts de linéarité sont constatés.

Par conséquent, cette méthode n'est pas suffisamment fiable.

4.4. MISE EN ŒUVRE DE LA METHODE ALLEMANDE POMPE ARRETEE

Il a été vu que l'arrêt et la remise en marche de la pompe en cours de manipulation entraînaient des perturbations de la fréquence d'oscillation (méthode allemande). Et qu'effectuer des dépôts à l'extérieur pour remettre ensuite le filtre sur la microbalance conduisait à de mauvais résultats (méthode précédente). Pour pallier ces problèmes, une étude a été menée sur une expérimentation pompe arrêtée pendant toute la manipulation.

Cette méthode cherche à étudier la conservation de la constante K_0 ainsi que la linéarité du système pompe arrêtée, et de comparer la masse réelle déposée (50 μg et 100 μg) et celle lue sur le TEOM [4].

4.4.1. Principe

Le principe est le même que pour la méthode allemande sauf que l'expérimentation se fait pompe arrêtée jusqu'à la fin de la manipulation.

Cette méthode a impliqué de tester au préalable si le fonctionnement du TEOM demeurerait le même avec ou sans débit d'air.

4.4.2. Vérification de la conservation de la constante de réglage

La comparaison des K_0 (pompe en fonction et pompe arrêtée) se fait en mode étalonnage. L'appareil calcule le K_0 à l'aide de la formule suivante (cf. partie 3.1) :

$$K_0 = \Delta m / [(1 / f_1^2) - (1 / f_0^2)]$$

Où : f_0 est la fréquence correspondant à une mesure sans filtre et f_1 , celle avec le filtre.

Résultat : Il n'existe pas de différence significative entre les K_0 avec ou sans l'arrêt de la pompe.

4.4.3. Vérification de la linéarité

La linéarité est vérifiée si des dépôts successifs de NaCl sur le filtre de la microbalance entraînent une augmentation constante de la masse.

La linéarité a bien été vérifiée pour des masses de 50 μg .

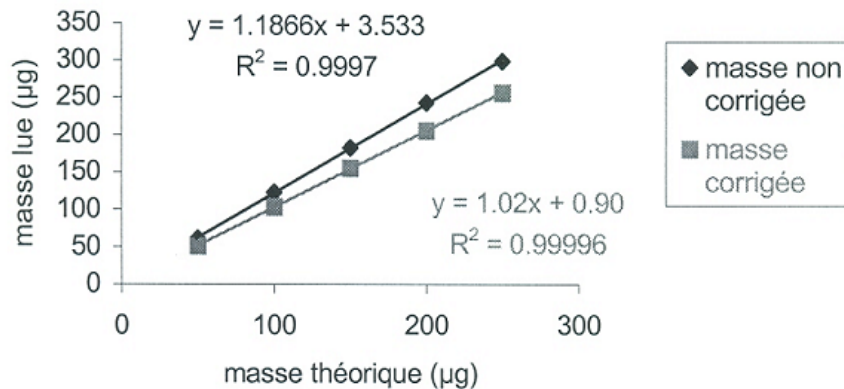


Figure 3 : Linéarité du TEOM pour des masses de 50 µg

Les masses non corrigées représentent les masses lues directement sur le TEOM, les masses corrigées représentent les masses lues sur le TEOM mais corrigées de la dérive de la fréquence [5] (la fréquence ne se stabilise pas après l'évaporation de la solution de NaCl) et de la masse résiduelle (masse de solution non évaporée demeurant sur le filtre).

4.4.4. Comparaison masse réelle / masse lue

Si on tient compte de la dérive de la fréquence et de la masse résiduelle, la méthode mise en place semble meilleure que la méthode allemande initiale avec une incertitude de 2,9 % au lieu de 12 % pour des masses de 100 µg et 1,9% pour des masses de 50 µg.

4.5. INTRODUCTION D'UN AEROSOL

Les méthodes précédentes ne tiennent pas compte des conditions normales d'utilisation du TEOM et principalement du système de prélèvement en amont de la mesure de la masse. Ainsi un protocole expérimental permettant au TEOM d'aspirer un aérosol par la canne de prélèvement serait plus proche de ces conditions.

Des premiers essais ont été réalisés pour introduire un aérosol dans le TEOM, le but étant de comparer la masse de particules déposées sur le filtre du TEOM par pesée et la masse lue par l'appareil de mesure [4] [6].

4.5.1. Montages simples

Montage 1

De la farine est introduite dans une sphère et mise en suspension par de l'air comprimé et filtré. Le débit du TEOM étant de 3 L/min, une fuite est réalisée afin de permettre à l'excès d'air de sortir.

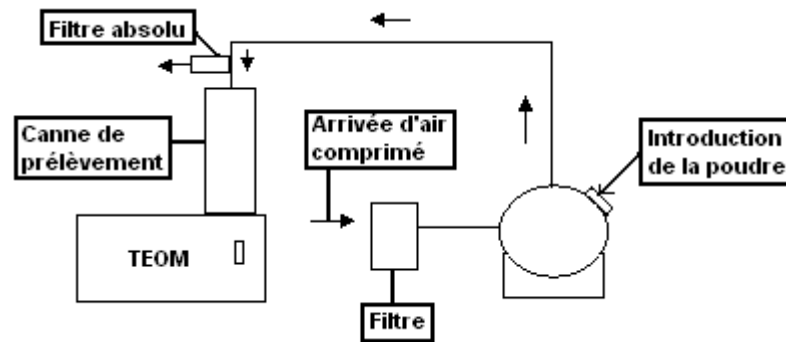


Figure 4 : Schéma du montage n°1

Problèmes : Toutes les mesures sont faussées à cause des perturbations de la fréquence d'oscillation dues à la différence de pression et de température de l'air comprimé.

Pour pallier ce problème, dans le montage suivant, le TEOM aspire l'air ambiant.

Montage 2

L'air ambiant aspiré par le TEOM passe dans un filtre absolu, puis dans une sphère en verre qui sert à introduire la poudre.

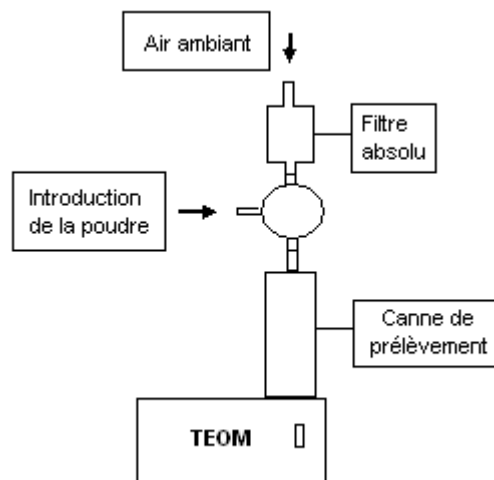


Figure 5 : Schéma du montage n°2

Problèmes : Une mauvaise dispersion de la poudre conduit à un dépôt en amas sur le filtre entraînant une plus grande instabilité de la fréquence avec un bruit de fond important. Il y a un risque de perte de la poudre lors du retrait du filtre, avec en plus des pertes importantes au niveau des parois et à côté du filtre.

4.5.2. Utilisation d'un générateur d'aérosol SSPD

Le SSPD (Smale Scales Powder Disperser) est un générateur d'aérosol (cf. annexe 3). L'utilisation d'un aspirateur Venturi permet de soulever l'échantillon de poudre placé sur un plateau tournant lentement. La vitesse du plateau peut varier et produire des concentrations d'aérosols allant de 0,3 à 4 mg/m³.

Le débit du SSPD est de 5 l/min tandis que celui du TEOM est de 3 l/min, il a donc fallu mettre en place une fuite avec un filtre pour récupérer la poudre et une pompe pour maintenir le débit à 2 l/min.

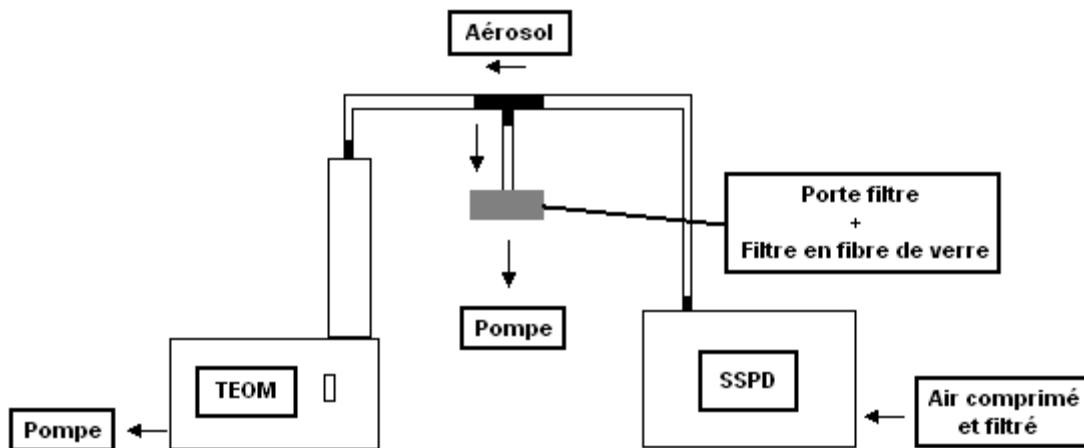


Figure 6 : Utilisation d'un générateur d'aérosol SSPD

Des tests préliminaires sur l'appareil ont montré que les pertes de poudre s'élevaient à 86% et se situaient essentiellement au niveau du cône de dispersion. Les résultats peu concluants ont montré que la méthode n'était pas fiable.

4.6. ETUDE DE COMPARAISON MENEES PAR L'UNIVERSITE PARIS XII

Cette étude a été menée à l'Université Paris XII et porte, entre autres, sur la mise en place d'un dispositif expérimental d'étalonnage du TEOM par utilisation d'un générateur de type MAGE. Ce générateur fonctionne sur le principe Sinclair-La-Mer qui est basé sur la technique de condensation hétérogène.

Le débit du MAGE est de 4 l/min, alors que la tête PM10 qui équipe ici le TEOM nécessite un débit de 16,67 l/min, ce qui rend indispensable l'utilisation d'une chambre de dispersion. Cette chambre de dispersion est une sphère de 800 L environ équipée d'un ventilateur d'homogénéisation de la concentration en aérosol. La tête de prélèvement est disposée à l'intérieur de cette sphère, à la verticale du TEOM. Pour compenser la différence de débit entre le générateur et le TEOM, de l'air filtré entre dans la sphère. Un filtre est mis en parallèle avec le TEOM pour comparaison. La présence d'un compteur optique de particule (COP) et d'un compteur de noyaux de condensation (CNC) permet de connaître à tout instant le diamètre et la concentration de l'aérosol généré et ainsi de remonter par calcul à sa concentration massique qui pourra être comparée à celle affichée par le TEOM.

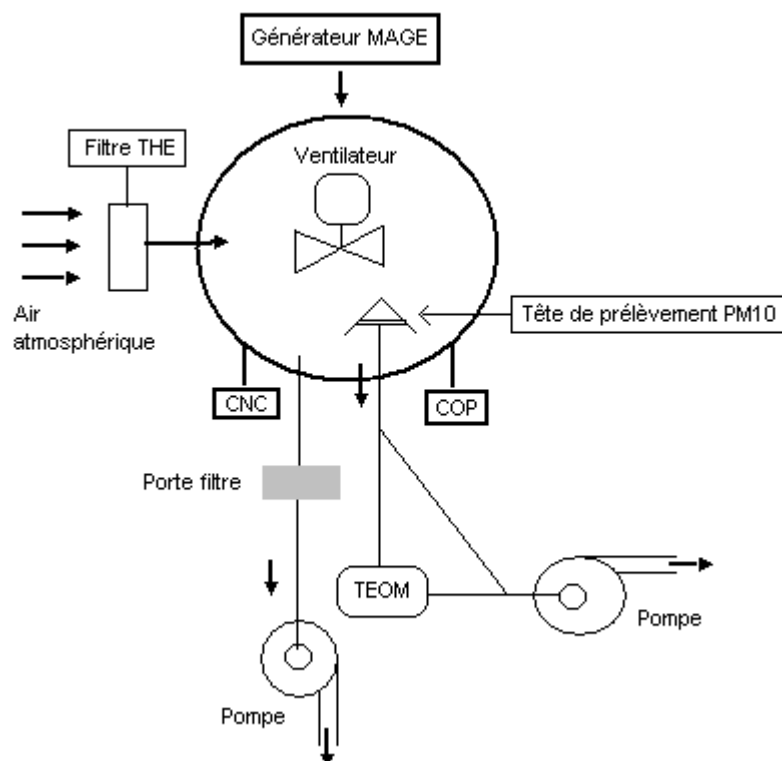


Figure 7 : Montage utilisé par l'Université Paris XII

La comparaison entre la réponse du TEOM et celle du préleveur manuel vertical donne des résultats presque identiques avec des différences de l'ordre de 0,5 % et jamais dans le même sens.

Cette étude a servi de point de départ au LNE pour le développement d'une nouvelle méthode d'étalonnage en masse du TEOM.

5. RECHERCHE D'UN GÉNÉRATEUR D'AÉROSOL ADAPTE AUX CONDITIONS DE L'ÉTUDE MENÉE

Au vu des études précédentes, l'utilisation d'un générateur d'aérosol pour étalonner le TEOM paraît plus judicieuse car il permet de tester le TEOM dans les conditions normales d'utilisation de l'appareil.

Dans le choix du générateur à utiliser, il faudra tenir compte des restrictions liées au TEOM et des caractéristiques du générateur.

5.1. RESTRICTIONS LIEES AU TEOM

- ✓ Le TEOM doit préalablement aspirer de l'air exempt de toute particule afin d'effectuer la mesure de la fréquence f_0 .
- ✓ Lors de son introduction, l'aérosol doit se déposer uniformément sur le filtre.
- ✓ Le TEOM doit de nouveau aspirer de l'air propre pendant au moins 25 minutes, pour la stabilisation de sa fréquence et de sa mesure du fait du lissage des mesures.
- ✓ Il n'est pas possible de peser le filtre du TEOM pour connaître la masse réellement déposée car il existe des pertes non négligeables et non reproductibles de poudre lors du retrait du filtre avec la pince.

5.2. CARACTERISTIQUES DU GENERATEUR

- ✓ L'aérosol doit être sec à cause de la température de la microbalance.
- ✓ Dans un souci de reproductibilité, les concentrations générées doivent être stables.
- ✓ Les particules doivent-elles être préférentiellement grosses ou fines ?
 - Les générateurs de fines particules ne sont pas idéaux car il y a des pertes au niveau du filtre (efficacité du filtre) et il faudrait un temps important pour collecter une masse suffisante.
 - Les grosses particules sont à éviter car elles sont rares dans l'atmosphère.
- ✓ Les quantités introduites ne doivent pas excéder 3 à 5 mg sinon il y a un risque de saturation du filtre.
- ✓ Il faut tenir compte du débit en se rappelant que celui du TEOM est de 3 l/min.

5.3. CHAMBRE DE DISPERSION

Une chambre de dispersion s'avère nécessaire si le débit du générateur est différent de celui du TEOM.

- ✓ Il faudrait qu'elle soit de forme sphérique pour éviter les dépôts dans les angles.
- ✓ Un grand volume permettrait une meilleure dilution.

5.4. CONCLUSION

Le PALAS Aerosol Generator GFG-1000 semble parfaitement adapté à cette étude :

- ✓ Le débit volumique est de l'ordre de grandeur du débit d'un TEOM et pourrait permettre de générer l'aérosol intégralement dans l'analyseur sans passer par une chambre de dispersion.
- ✓ Le débit massique est dans la gamme d'utilisation du TEOM.

Cet appareil génère des particules de suies artificielles à partir de graphite pur. La concentration est supérieure à 10^7 particules/cm³ ; la taille première des particules est de 3-5 nm ; en s'agglomérant, elles forment des particules de diamètre compris entre 20 et 150 nm.

Malheureusement, le constructeur n'a pas pu nous prêter un générateur de particules PALAS GFG-1000 en 2005, car il n'avait pas d'appareil disponible à cette époque.

Il a donc été décidé de réaliser des essais préliminaires avec le Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) du LNE. Le SMPS (modèle 3936 de chez TSI) est un appareil qui permet de générer des aérosols submicroniques dont le diamètre des particules est compris entre 3 et 1000 nm. La concentration peut varier de 1 à 10^8 particules/cm³.

Il s'agit d'un appareil répétable et reproductible.

NB : Il est à noter qu'un générateur de particules PALAS Aerosol Generator GFG-1000 a été commandé en fin d'année 2005 et que des essais seront effectués avec cet appareil au cours de l'année 2006.

6. MISE EN ŒUVRE DU SMPS

6.1. PRESENTATION DU SMPS

La taille des particules est mesurée par un Electrostatic Classifier (modèle 3080 de TSI) associé à un Long Differential Mobility Analyzer (LDMA, modèle 3081 de TSI). Le Condensation Particle Counter (CPC, modèle 3022 de TSI) a pour rôle de déterminer la concentration des particules.



Figure 8 : Représentation du SMPS

Le SMPS mesure la distribution en nombre de la taille des particules en se basant sur une technique de détection de la mobilité électrique. Ce qui permet la génération d'un aérosol monodispersé à partir d'un aérosol polydispersé.

L'échantillon d'aérosol est prélevé à travers un impacteur dont le rôle est de soustraire de l'aérosol les particules supérieures à un certain diamètre aérodynamique car elles peuvent être multichargées. Cet aérosol passe ensuite par le neutraliseur qui va charger les particules. Enfin, il pénètre dans le LDMA où un débit d'air propre (sheath air) est ajouté afin d'assurer un flux laminaire et de protéger l'électrode sélective centrale. L'état de charge de chaque particule étant connu et dépendant directement de sa taille, la mobilité électrique de chaque particule est donc connue. Les particules sont ainsi séparées selon leurs mobilités électriques.

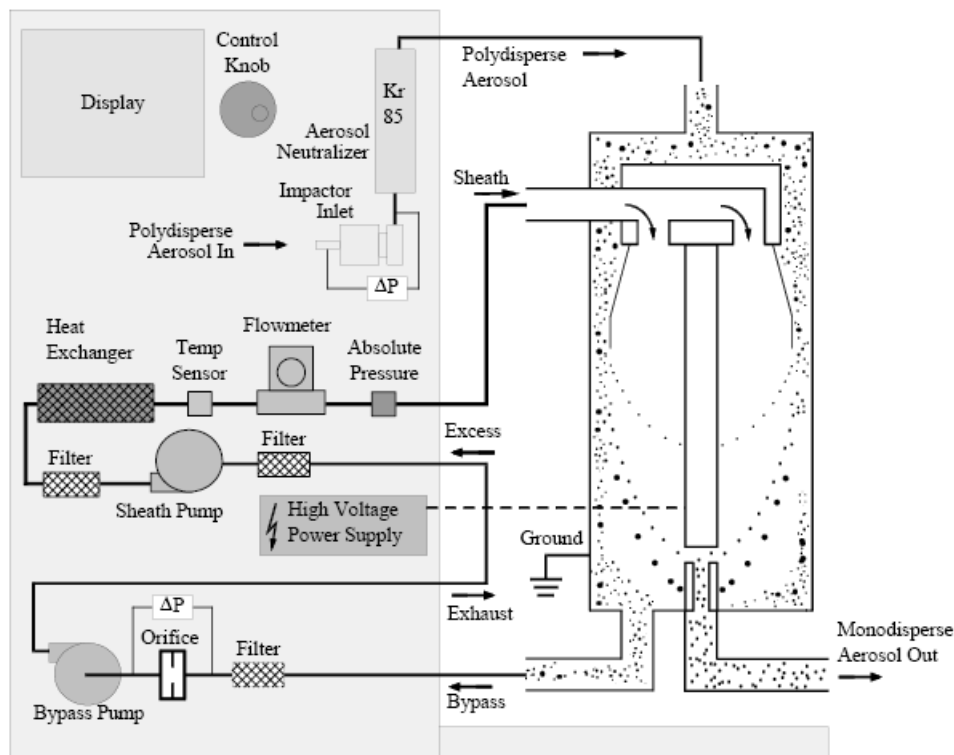


Figure 9 : Schéma de fonctionnement du SMPS

Le schéma permet de voir que si le Sheath flow et le bypass sont égaux, alors le débit de sortie du SMPS (débit de l'aérosol monodispersé) correspondra au débit d'entrée (débit de l'aérosol polydispersé). Il est recommandé de conserver un rapport de 10 : 1 entre le Sheath flow et le Sample flow.

Le CPC peut fonctionner à deux débits d'échantillonnage différents : en low flow mode, ce qui correspond à un débit de 0,3 l/min ou en high flow mode qui correspond à un débit de 1,5 l/min. L'aérosol qui entre dans l'appareil est exposé à une vapeur de butanol. Le flux de particules et de vapeur passe ensuite à travers le condenseur, où la vapeur de butanol condense sur toutes les particules. Ce phénomène augmente la taille initiale des particules. Ces gouttelettes de tailles plus importantes traversent ensuite un faisceau laser et chaque gouttelette diffuse de la lumière. Ces pics d'intensité de lumière diffusée sont comptés en continu et exprimés en particules/cm³ sur un écran LCD.

6.2. GENERATION DE L'AEROSOL

La méthode consiste à tout d'abord générer un aérosol polydispersé avec un atomiseur et ensuite d'en extraire les particules comprises dans un intervalle de taille étroit grâce au LDMA. Le schéma ci dessous représente le système complet nécessaire à la génération d'un aérosol monodispersé.

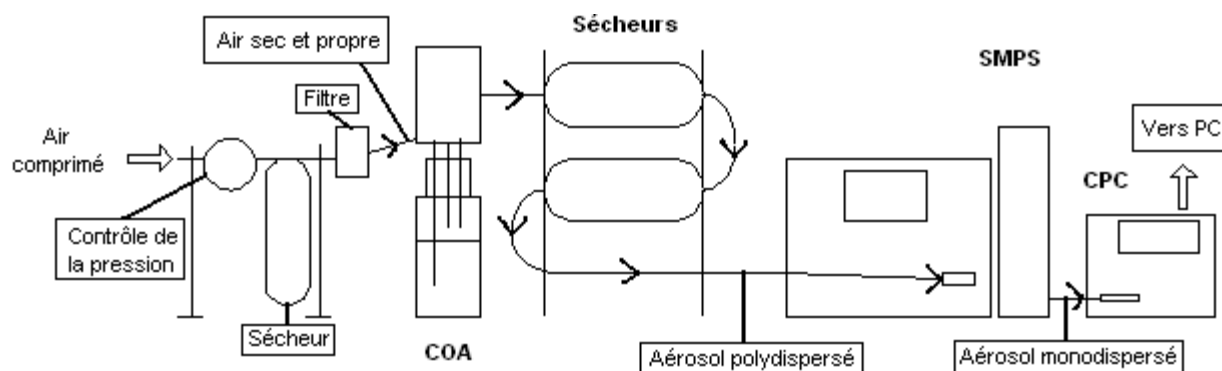


Figure 10 : Génération de l'aérosol

Le premier élément est un Air Supply System (ASS, modèle 3074 de TSI) dont la fonction est de fournir de l'air propre et sec à l'atomiseur ainsi qu'à l'Electrostatic Classifier. L'ASS est composé d'un régulateur de pression (la pression ne doit pas dépasser 35 psi), d'un sécheur et d'un filtre à très haute efficacité.

Le second élément est un Constant Output Atomizer (COA, modèle 3076 de TSI) utilisé pour générer un aérosol polydispersé à partir d'une solution. Cet aérosol traverse ensuite deux sécheurs qui absorbent l'humidité.

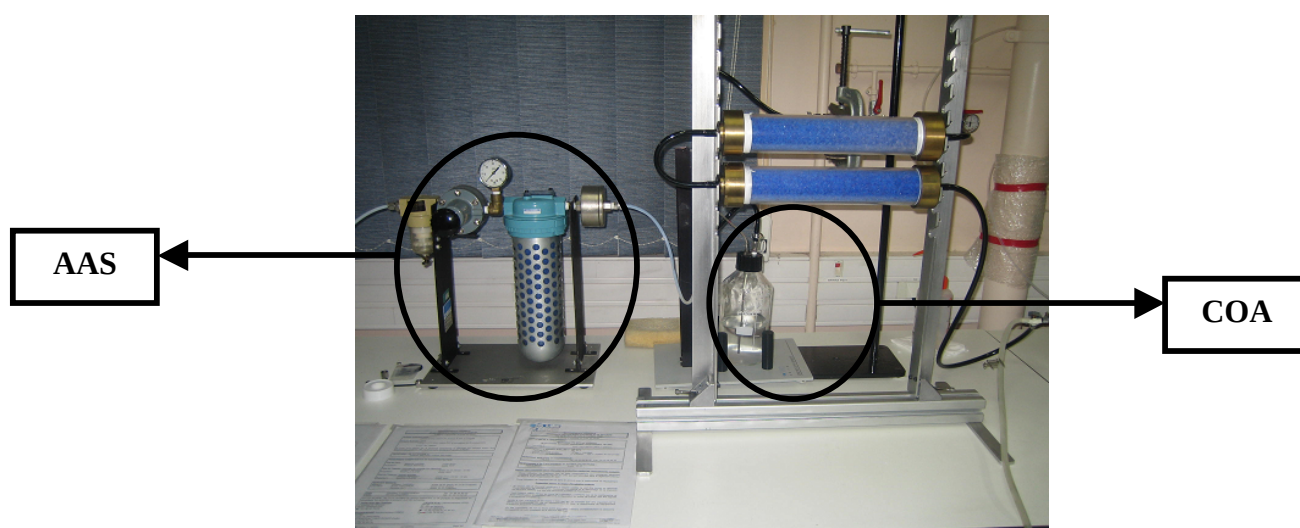


Figure 11 : Le ASS et le COA

L'aérosol ainsi asséché entre dans le SMPS qui fournit ensuite au CPC un aérosol monodispersé, centré sur un diamètre majoritaire de particules (cf. Figure 16).

6.3. PARAMETRES IMPORTANTS

La taille des particules en sortie du SMPS est influencée par plusieurs paramètres :

- ✓ la concentration en NaCl de la solution : il faut toutefois noter que ce paramètre n'est que très légèrement influent comme le montre la figure suivante.
Dans la suite des expérimentations, la concentration en NaCl est de $1,0 \cdot 10^{-3}$ g/ml.

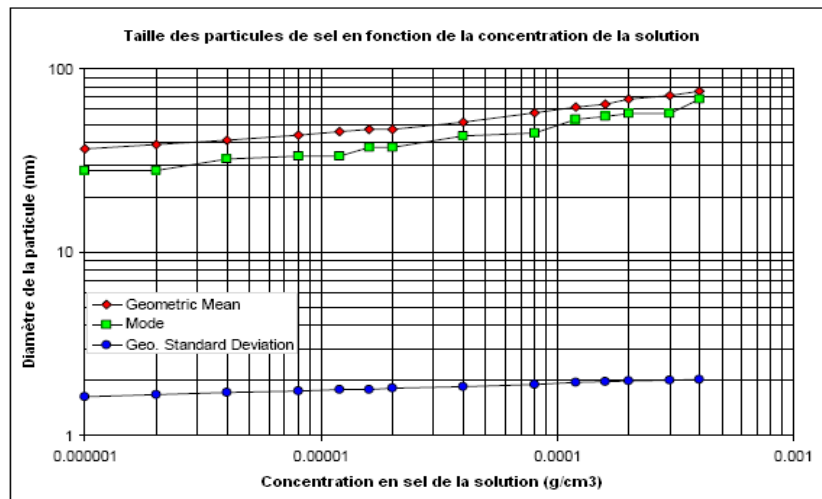


Figure 12 : Diamètre des particules en fonction de la concentration de la solution en NaCl

- ✓ le diamètre de l'orifice de l'impacteur : il existe trois tailles pour l'orifice : 0,0457 cm, 0,0508 cm et 0,071 cm (ce dernier laisse passer même les plus grosses particules),
- ✓ les différents débits,
- ✓ la pression dans le ASS : plus la pression est importante, plus la taille des particules augmente.

Dans le cadre de cette étude, les valeurs des différents paramètres sont les suivants :

COA	Pression	30 psi (environ 2 bars)
SMPS	Orifice de l'impacteur	0,0508 cm
	Sheat flow	3 l/min
	Bypass	3 l/min
CPC	Débit	0,3 l/min

Tableau 1 : Valeurs des paramètres des différents appareils

Il est nécessaire de réaliser une fuite à l'entrée du SMPS pour avoir un débit de 0,3 l/min.

6.4. PROBLEMES RENCONTRES

Ces appareils n'ayant pas été utilisés depuis environ 3 ans, leurs mises en route se sont avérées difficiles.

La première difficulté rencontrée concernait le SMPS qui affichait en entrée un débit supérieur à 1,24 l/min. Il était branché uniquement au CPC (le COA n'était pas encore utilisé) qui aspirait en low flow mode soit à 0,3 l/min (vérifié avec un débitmètre), donc le débit en entrée du SMPS mesuré par l'impacteur devait lui aussi être de 0,3 l/min.

Le problème ne pouvant venir que de l'impacteur, ce dernier a été démonté pour être nettoyé et pour vérifier son état. Il a alors été constaté que l'une des pièces de l'impacteur était cassée entraînant une fuite à ce niveau. Après avoir remplacé la pièce cassée, le débit a retrouvé une valeur normale.

Dans le même temps, un problème au niveau du débit est également apparu dans le CPC. Le débit ne parvenait pas à se stabiliser indiquant successivement un débit trop faible puis trop fort et ainsi de suite. Cette instabilité n'apparaissait qu'en mode low flow, le débit se stabilisant sans problème en mode high flow. L'origine de cette instabilité pouvait provenir soit des différents tuyaux à l'intérieur du CPC encrassés par l'aérosol, soit de la pompe, soit du capillaire qui gère le low flow mode.

Après avoir purgé l'appareil pendant deux nuits, le débit est parvenu à se stabiliser de nouveau mais difficilement.

Branché au SMPS, ce dernier affichait un débit de 0,66 l/min alors que le CPC était censé aspirer à 0,3 l/min.

Le débit en entrée du SMPS a été mesuré à l'aide d'un débitmètre et était d'environ 0,3 l/min, même valeur pour le débit en entrée du CPC. Alors pourquoi le SMPS affichait-il une valeur égale à 0,66 l/min ? Le problème avait pour cause l'encrassement du capteur de débit, ce qui ne gênait en aucun cas la poursuite des essais.

6.5. TESTS EFFECTUES SUR LE SMPS

Une série de cinq mesures a été réalisée pour tester la reproductibilité de l'appareil. Le dispositif expérimental est celui décrit en 6.2.

Le CPC mesure l'aérosol reçu avec un intervalle de cinq minutes entre chaque sample (un sample correspondant à une mesure de l'aérosol par le CPC).

Le tableau suivant donne les concentrations mesurées pour chaque sample pour un diamètre donné.

	Concentration mesurée pour un diamètre de 76,35 nm (p / cm3)
Sample 1	$1,09 \cdot 10^7$
Sample 2	$1,07 \cdot 10^7$
Sample 3	$1,04 \cdot 10^7$
Sample 4	$1,06 \cdot 10^7$
Sample 5	$1,08 \cdot 10^7$
Sample 6	$1,07 \cdot 10^7$
Sample 7	$1,05 \cdot 10^7$
Sample 8	$1,01 \cdot 10^7$
Sample 9	$1,00 \cdot 10^7$
Sample 10	$1,00 \cdot 10^7$
Moyenne	$1,05 \cdot 10^7$
Ecart-type	$2,99 \cdot 10^5$
Ecart type relatif (%)	2,86

Tableau 2 : Concentrations de l'aérosol sur dix essais

Les résultats montrent que la réponse du SMPS peut être considérée comme répétable.

Voici en exemple un Sample :

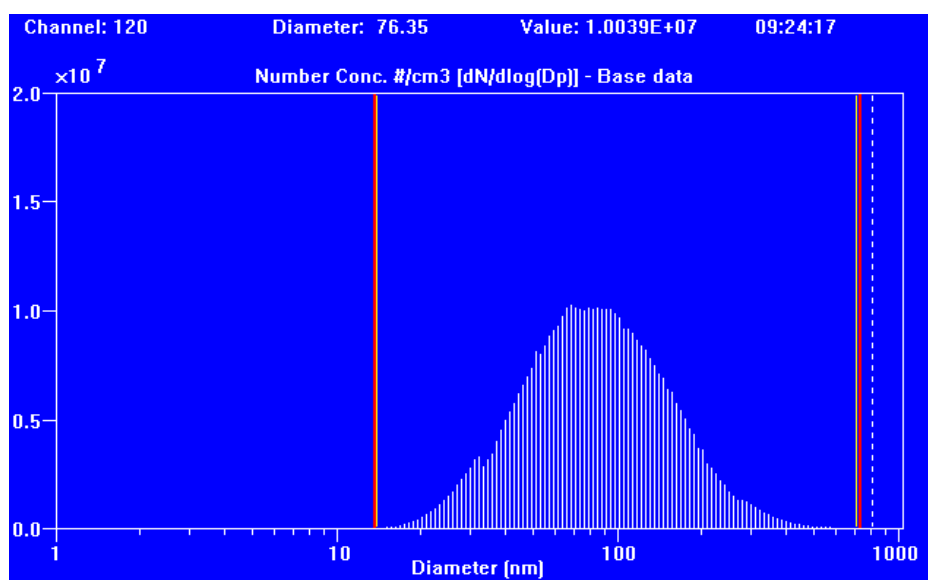


Figure 13 : Concentration de l'aérosol en sortie du LDMA en particules/cm³

La figure 13 montre bien un aérosol monodispersé en sortie du LDMA.

7. ESSAIS PRELIMINAIRES MENES DANS LE CADRE DE L'ETALONNAGE DU TEOM

7.1. MODE OPERATOIRE

Ayant vérifié que le SMPS fonctionnait correctement, des essais préliminaires ont été effectués dans le but de développer une procédure d'étalonnage des TEOM.

Le dispositif expérimental est représenté sur le schéma ci-après.

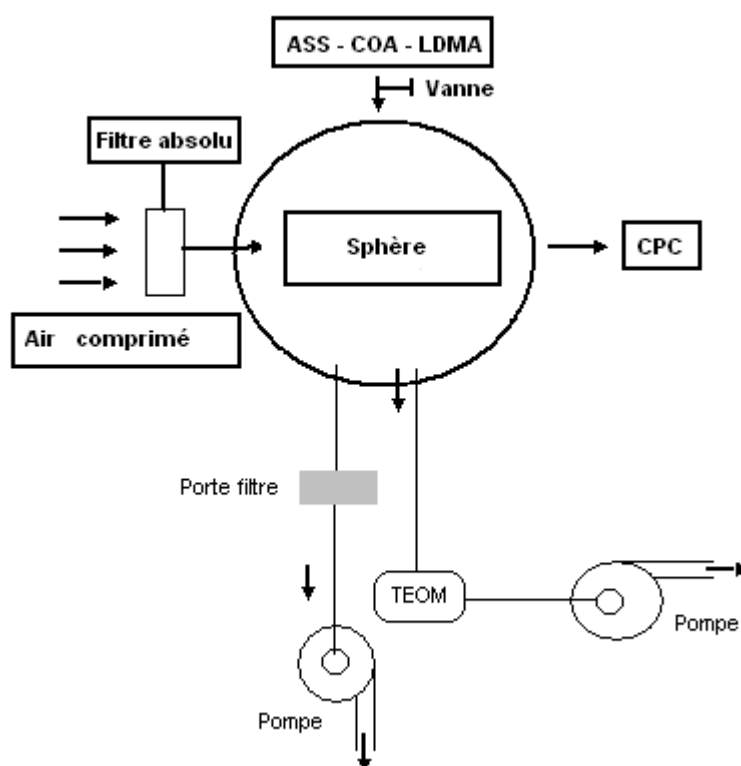


Figure 14 : Schéma du dispositif expérimental

Les deux pompes aspirent à un débit de 3 l/min. L'entrée d'air comprimé permet de compenser la différence de débit qui existe entre ce qui est émis et ce qui est aspiré. La vanne permet de ne faire entrer l'aérosol dans la sphère qu'à partir du moment où l'air qu'elle contient est exempt de toute particule. Ainsi, lorsque la vanne est fermée, seul l'air comprimé filtré pénètre dans la sphère, ce qui permet de faire un blanc pour le TEOM qui doit, avant de pouvoir commencer les mesures, aspirer de l'air propre pour effectuer la mesure de la fréquence f_0 .

A la fin des essais, le filtre positionné en parallèle du TEOM est pesé et la masse mesurée est comparée à celle affichée par le TEOM.

7.2. PREMIER MONTAGE

Dans ce premier montage, une sphère de dilution ayant un volume de 15 litres est utilisée (cf. annexe 4).

Avant de pouvoir commencer l'expérimentation comme décrit précédemment, il convient de vérifier que le CPC mesure bien l'aérosol généré dans la sphère.

Etape 1 :

Dans une première étape, il faut s'assurer que la présence de la vanne en sortie du LDMA ne modifie pas l'aérosol généré. Pour ce faire, le LDMA est relié directement au CPC par l'intermédiaire de cette même vanne :

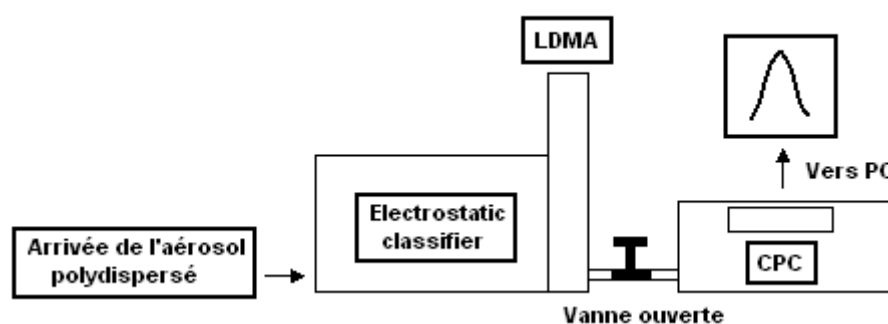


Figure 15 : Influence de la vanne en sortie du LDMA

La figure suivante montre l'aérosol mesuré par le compteur de particules :

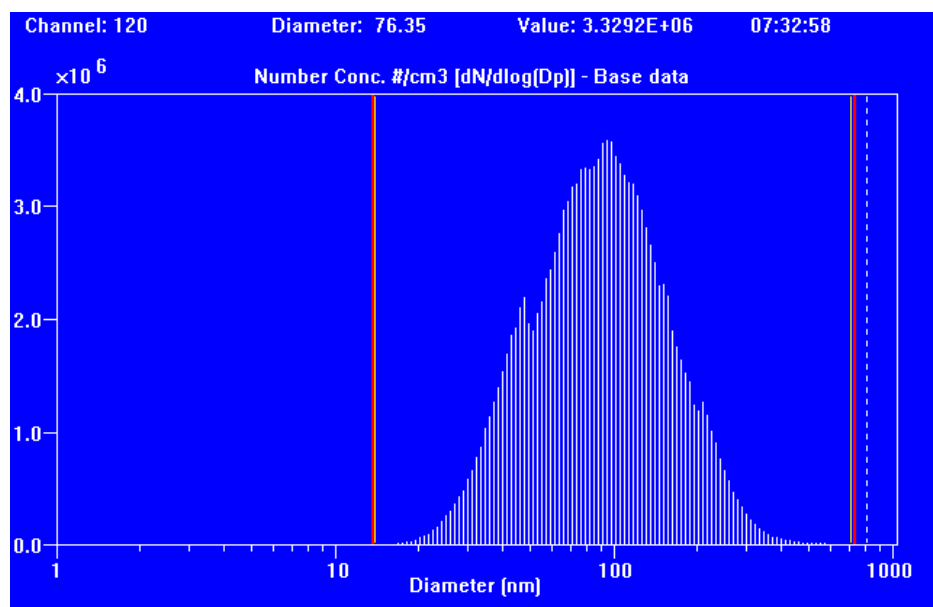


Figure 16 : Spectre granulométrique de l'aérosol mesuré par le CPC relié au LDMA par une vanne

La présence de la vanne ne pose aucun problème, puisque l'on retrouve en sortie un aérosol monodispersé. Cependant la vanne entraîne des pertes car la concentration est inférieure à celle qui avait été mesurée sans la vanne.

Etape 2 :

Dans une seconde étape, le dispositif suivant est mis en place :

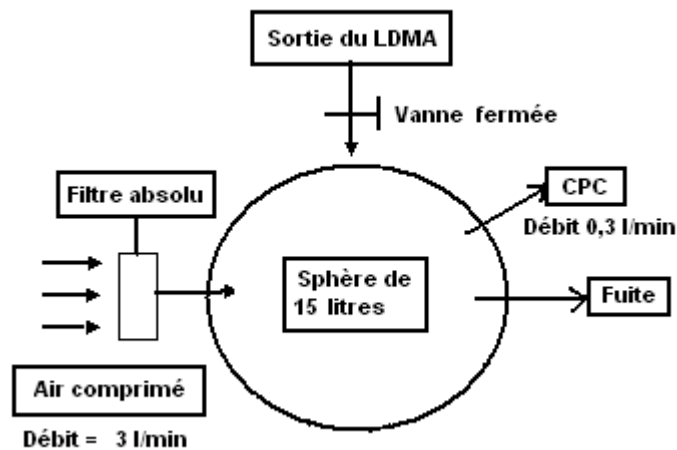


Figure 17 : Réalisation du blanc

La vanne est fermée. Le débit d'air comprimé est régulé par un RDM (Régulateur de Débit Massique) et est égal à 3 l/min. Une fuite permet à l'excès d'air de sortir. De cette façon, au bout d'un certain temps, l'air présent à l'intérieur de la sphère est exempt de particules comme le montrent les mesures faites avec le CPC :

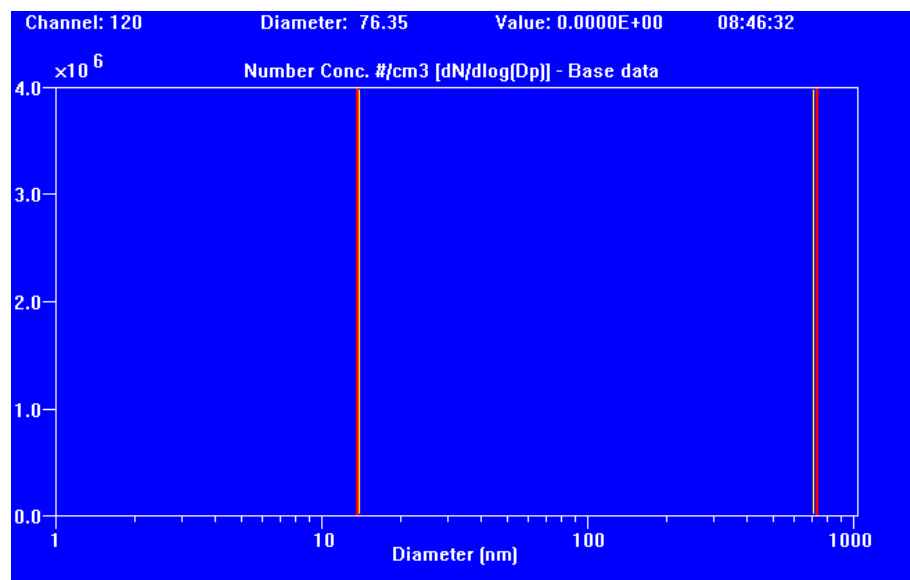


Figure 18 : Spectre granulométrique du blanc

Etape 3 :

Dans une troisième étape, la vanne est ouverte pour permettre l'entrée de l'aérosol dans la sphère. Le débit d'air comprimé est maintenu à 3 l/min, ce qui permet d'homogénéiser l'aérosol dans la sphère. Le CPC mesure l'aérosol présent dans la sphère à différents intervalles de temps pour voir l'évolution.

La figure suivante montre l'aérosol présent dans la sphère au bout de cinq heures :

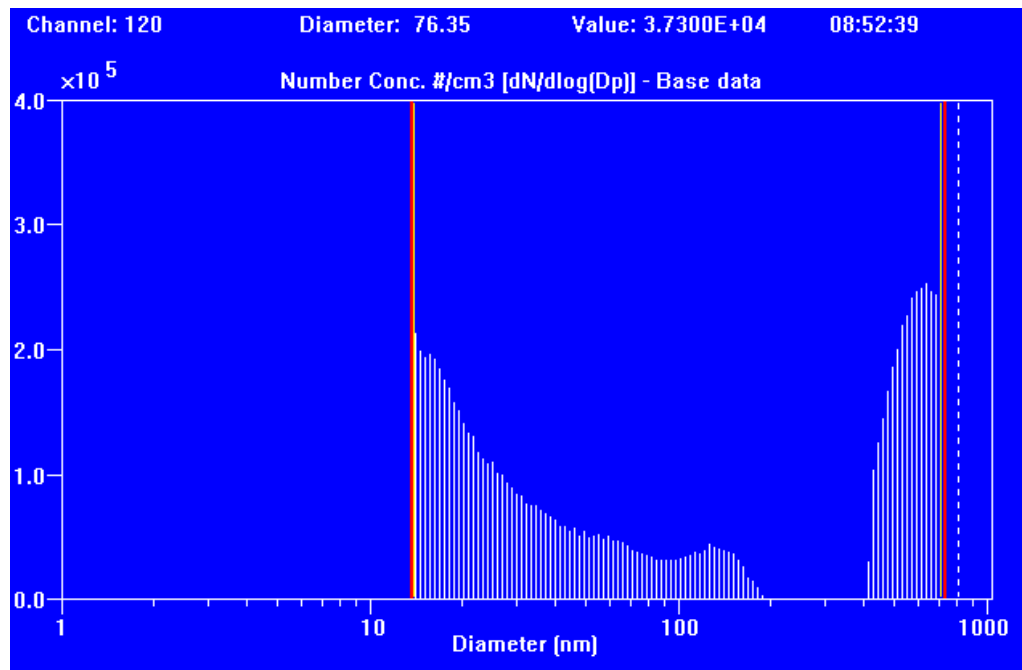


Figure 19 : Spectre granulométrique de l'aérosol mesuré après 5 heures d'essais

Le spectre granulométrique de l'aérosol mesuré est très différent de celui déterminé dans la première étape.

En fait, il est difficile de savoir comment se comporte l'aérosol une fois à l'intérieur de la sphère. Il est possible que le volume important (15 litres) conduise à une dilution trop importante de l'aérosol et puisse empêcher son homogénéisation. Le CPC mesure beaucoup plus de particules fines, ce qui laisse penser que les plus grosses particules ont tendance à se déposer vers le fond.

Par conséquent, dans les essais suivants, il a semblé plus judicieux d'utiliser une sphère de plus petit volume.

7.3. SECOND MONTAGE

Dans ce second montage, une sphère de dilution d'un volume égal à deux litres a été utilisée (cf. annexe 4).

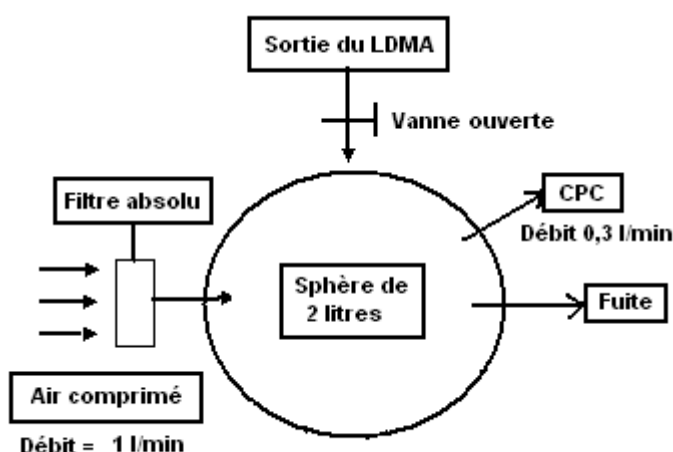


Figure 20 : Dispositif expérimental avec une sphère d'homogénéisation de 2 litres

7.3.1. Mesure de l'aérosol présent dans la sphère

Les deux premières étapes sont réalisées de la même manière que précédemment. Dans la troisième étape, le débit d'air comprimé est ramené à 1 l/min afin de ne pas trop diluer l'aérosol. En effet, avec un débit égal à 3 l/min, les concentrations dans la sphère sont très faibles.

Voici ce que mesure dès les premières minutes le CPC :

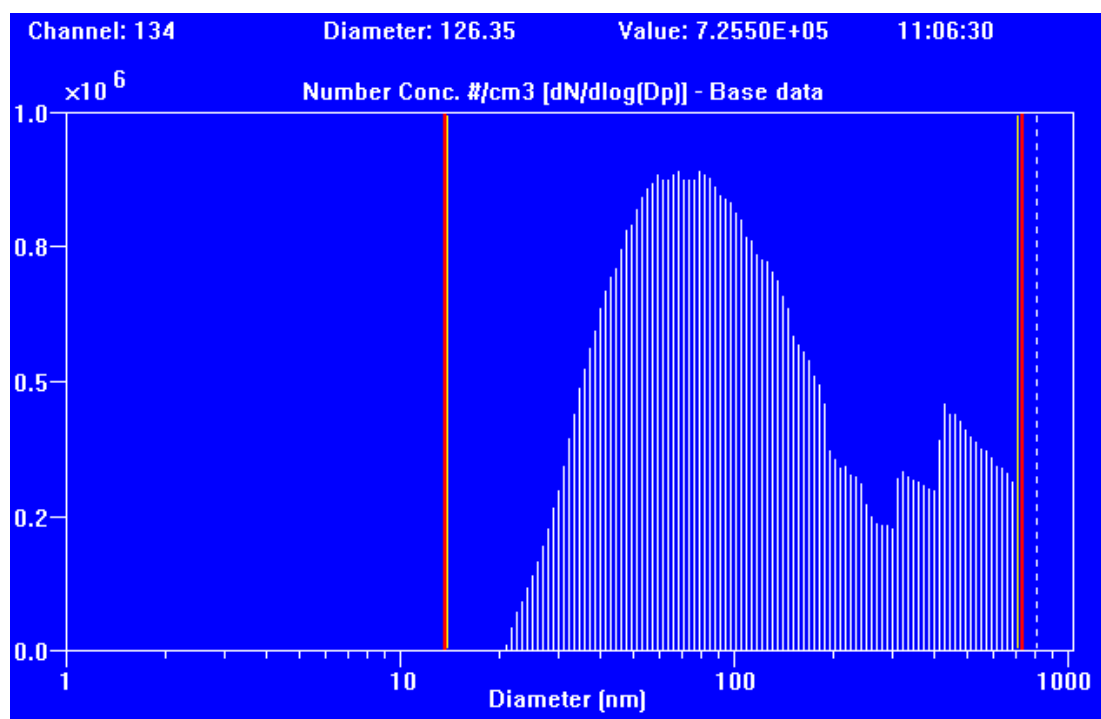


Figure 21 : Spectre granulométrique de l'aérosol présent dans la sphère au bout de quelques minutes

On retrouve bien l'aérosol mesuré en sortie du SMPS (cf. figure 16) mais en concentration plus faible, et avec une concentration plus importante de grosses particules.

L'expérimentation s'est déroulée toute une nuit pour permettre de voir l'évolution de l'aérosol dans la sphère.

Au bout d'environ quinze heures, le CPC mesure les concentrations suivantes :

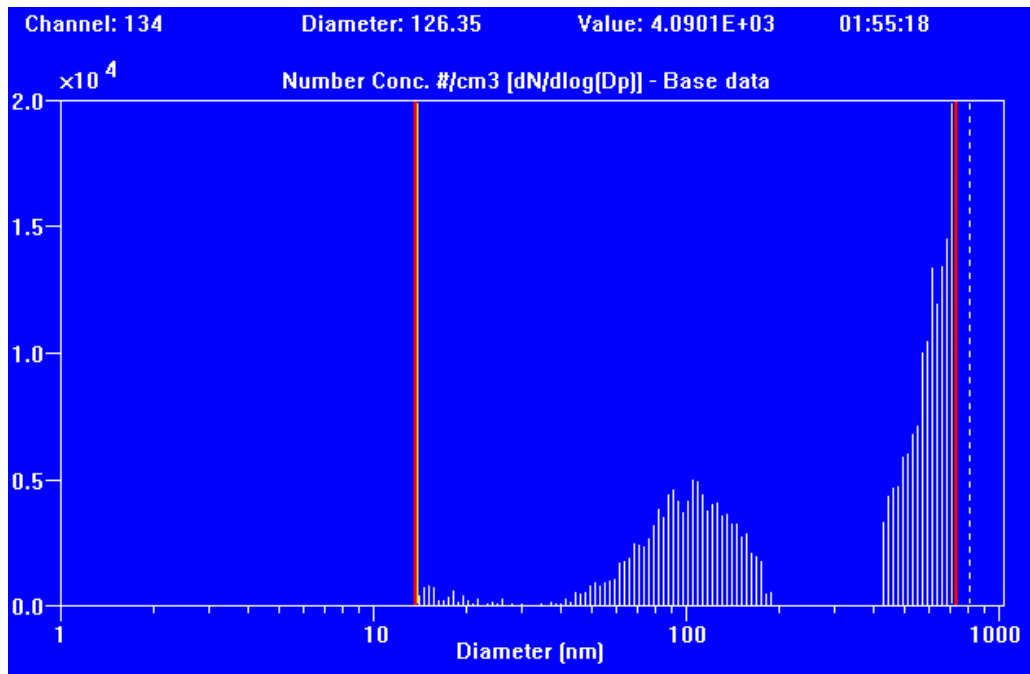


Figure 22 : Spectre granulométrique de l'aérosol présent dans la sphère après 15 heures

On peut remarquer qu'au début des essais, des particules très fines étaient présentes en quantité importante, alors qu'après 15 heures de génération, ce sont des particules relativement grosses qui sont présentes en quantité importante.

Il est possible que dans la sphère les petites particules s'agglomèrent entre elles pour former des particules plus grosses, ce qui expliquerait l'évolution de l'aérosol au cours du temps ainsi que la diminution des concentrations qui sont plus faibles qu'au départ (cf. figure 21). L'encrassement de l'impacteur pourrait également être une cause de ces concentrations plus faibles.

7.3.2. Comparaison filtre / filtre

7.3.2.1 Mode opératoire

Avant de réaliser le montage avec le TEOM, il convient de vérifier au préalable que deux filtres positionnés en parallèle à la sortie de la sphère collectent la même masse.

C'est ce que va permettre le montage suivant.

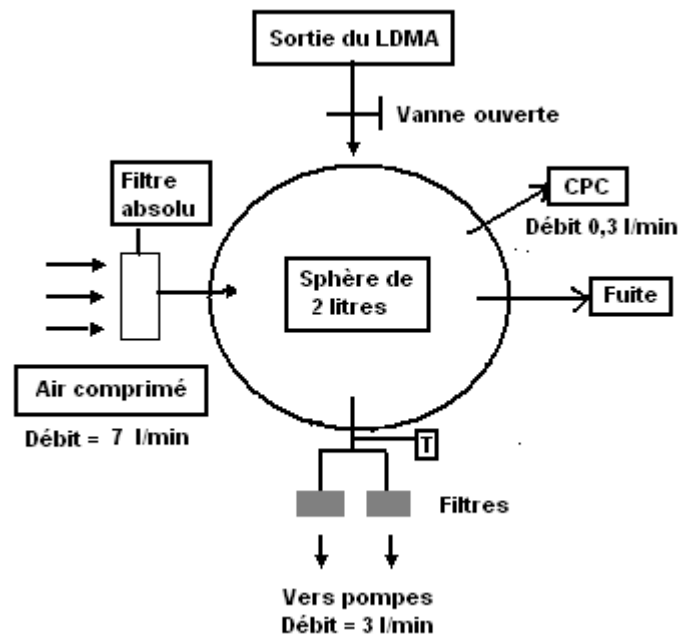


Figure 23 : Montage expérimental pour vérifier au préalable que deux filtres positionnés en parallèle à la sortie de la sphère collecte la même masse

Deux filtres sont positionnés en parallèle et reliés à deux pompes qui aspirent à un débit égal à 3 l/min. Les filtres sont un mélange d'esters de cellulose de diamètre 47 mm avec une porosité de 50 nm. Ce qui convient pour cette expérimentation puisque l'aérosol généré a un diamètre moyen autour de 80 nm. L'expérimentation a duré cinq heures entre la mise en marche et l'arrêt des pompes.

Les filtres sont pesés sur une balance METLER AX205 de précision 1.10^{-5} g avant et après chaque dépôt. Un filtre servant de blanc a également été préparé.

7.3.2.2 Résultats

Les pesées ont montré qu'aucune masse n'était mesurée sur les filtres alors que dans le même temps, le CPC mesurait des concentrations de l'ordre de 1.10^5 particules/cm³.

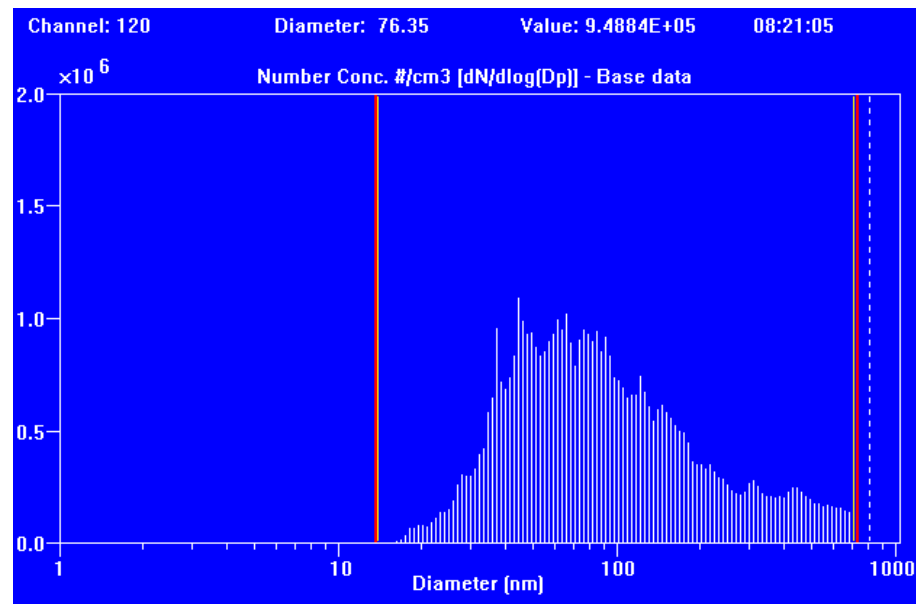


Figure 24 : Spectre granulométrique de l'aérosol présent dans la sphère pendant l'expérimentation

On peut supposer que cela vient du T positionné en amont des deux filtres. En effet, il est possible que les particules s'y impactent et n'arrivent donc pas jusqu'aux filtres. Une autre hypothèse concerne la durée de prélèvement qui est peut être trop courte et ne permet donc pas de collecter une masse suffisante pour être pesée.

7.3.2.3 Test du T

Pour vérifier les concentrations en aérosol impactées sur les filtres, l'un des filtres est remplacé par le CPC.

Le CPC a mesuré des concentrations de l'ordre de 1.10^5 particules/cm³. Le problème ne vient donc pas du T.

7.3.2.4 Conclusion

Le temps de prélèvement semble donc trop court pour collecter des masses suffisantes. Il faudrait donc augmenter la durée de l'expérimentation mais l'inconvénient est que l'impacteur s'encrasse, ce qui a pour effet de diminuer la concentration en aérosol généré qui par conséquent varie dans le temps et n'est plus constante.

Une expérimentation sans impacteur a tout de même été envisagée.

7.4. TROISIEME MONTAGE

Le montage est le même que celui décrit précédemment à l'exception de l'impacteur qui est retiré.

Il a été vu que l'impacteur servait à retirer de l'aérosol les plus grosses particules qui ont tendance à porter plusieurs charges, ce qui modifie la mobilité électrique de la particule.

7.4.1. Mesure de l'aérosol présent dans la sphère

Le mode opératoire est le même que pour le deuxième montage, mais sans l'impacteur.

Voici les concentrations mesurées par le CPC au tout début de la troisième étape.

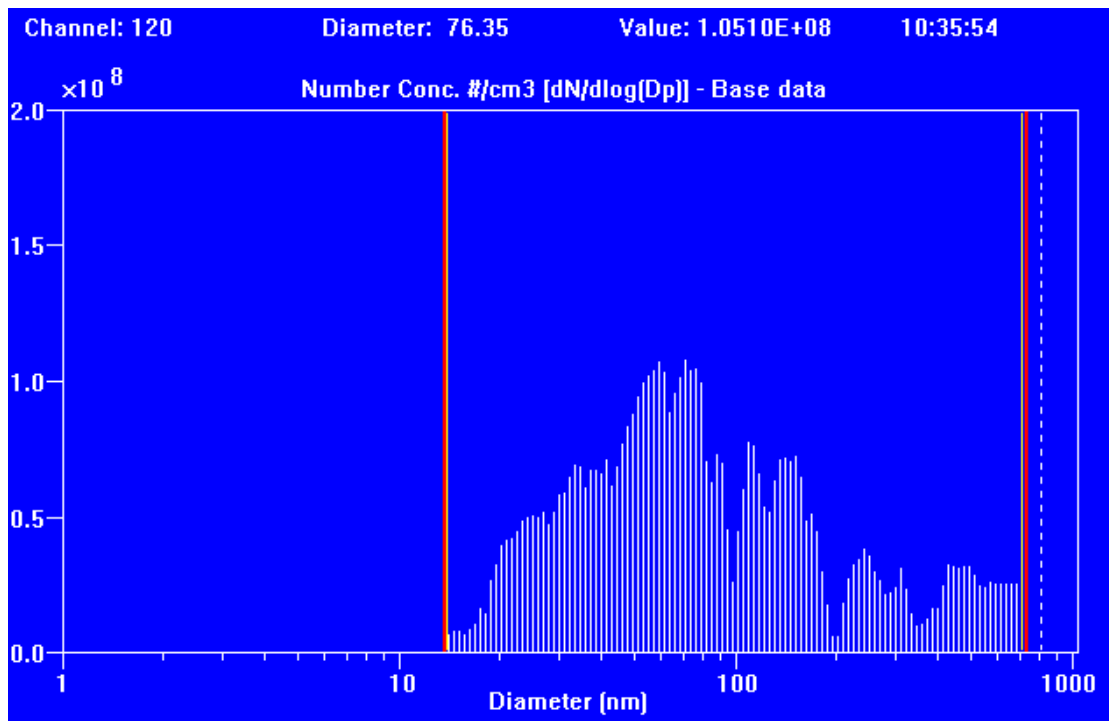


Figure 25 : Spectre granulométrique de l'aérosol présent dans la sphère sans impacteur

Si on compare les figures 21 et 25, on peut mettre en évidence l'effet de l'impacteur. De plus, les concentrations sont naturellement plus élevées.

Au bout d'environ quinze heures, l'aérosol mesuré est représenté sur la figure suivante.

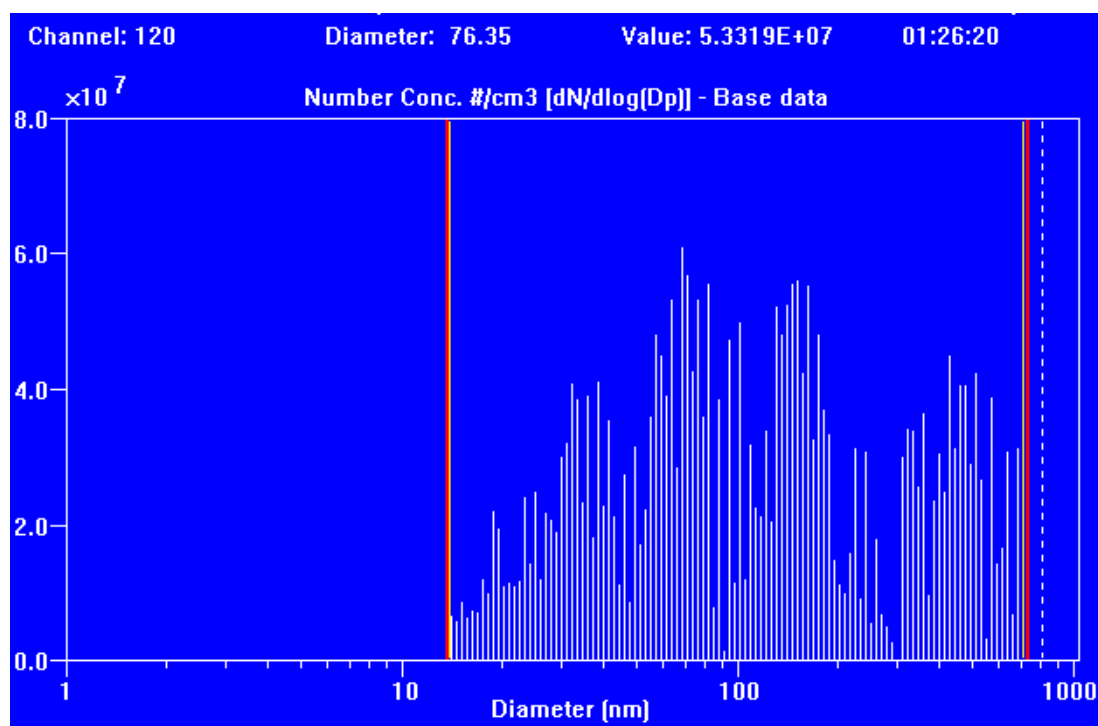


Figure 26 : Spectre granulométrique de l'aérosol présent dans la sphère sans impacteur au bout de 15 heures

Les concentrations ont diminué, mais pas autant que dans le cas où l'impacteur est utilisé. Cette diminution peut s'expliquer par l'encrassement de l'inlet (point d'entrée de l'aérosol) du SMPS et de celui du CPC.

7.4.2. Comparaison filtre / filtre

7.4.2.1 Mode opératoire

Le mode opératoire décrit en 7.3.2. est conservé mais sans l'impacteur. L'expérimentation a duré 8 heures.

7.4.2.2 Résultats

Comme précédemment, aucune masse n'est mesurée sur les filtres. Cette fois-ci le T est testé avec le CPC pendant plusieurs heures pour vérifier que sa présence n'entraîne pas une diminution de la concentration mesurée en fonction du temps. Après examen des données du CPC, il s'avère que ce n'est pas le cas.

7.4.2.3 Conclusion

Malgré une durée de prélèvement plus longue et des concentrations plus importantes que lors des essais avec l'impacteur, aucune masse n'est obtenue sur les filtres. Soit le temps de prélèvement est toujours trop court, soit le problème vient des filtres. Les filtres proviennent de la société Millipore qui nous a confirmé que les filtres utilisés étaient parfaitement adaptés pour les essais menés.

7.5. INTRODUCTION DIRECTE DE L'AEROSOL DANS LE TEOM

7.5.1. Mode opératoire

Une autre expérimentation a consisté à introduire directement l'aérosol dans le TEOM sans passer par une sphère de dilution qui, comme cela a été vu précédemment, ne conduit pas à de bons résultats. Mais, le débit du TEOM étant supérieur à celui du SMPS, il fallait une entrée d'air pour compenser cette différence de débit :

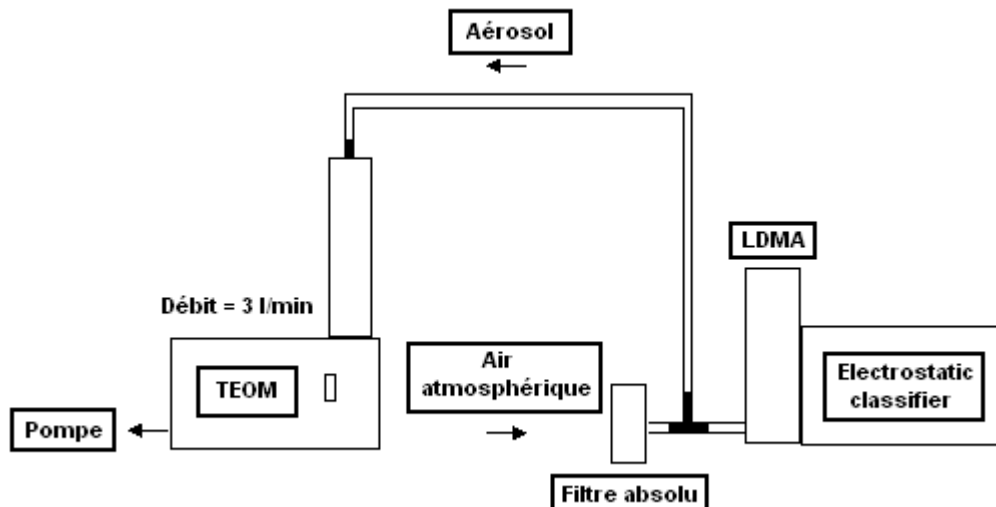


Figure 27 : Dispositif d'introduction directe de l'aérosol dans le TEOM

Le TEOM est placé sur un marbre et ne risque ainsi donc pas d'être soumis à des vibrations.

Pour permettre au TEOM de mesurer la fréquence f_0 , la vanne est fermée dans un premier temps. Ensuite, l'ouverture de la vanne conduit à l'introduction de l'aérosol dans le TEOM.

7.5.2. Résultats

Après 5 heures d'expérimentation, le TEOM affiche des valeurs négatives pour la concentration massique et la masse totale recueillie. Le débit du TEOM a été vérifié et était bien égal à 3 l/min.

Le TEOM n'a donc pas mesuré de masses, et les valeurs négatives sont certainement dues à la dérive de la fréquence.

Le fait que le TEOM n'ait rien mesuré peut provenir de sa position par rapport au générateur de particules. En effet, il est possible que l'aérosol ne parvienne pas jusqu'au TEOM et donc que le tube reliant les deux appareils entraîne des pertes.

7.5.3. Conclusion

Les résultats montrent qu'il serait intéressant :

- ✓ de diminuer la longueur du tube reliant le SMPS au TEOM de manière à réduire le parcours de l'aérosol,
- ✓ de placer le générateur en hauteur par rapport au TEOM pour une meilleure introduction de l'aérosol.

8. CONCLUSION GENERALE

Les différentes recherches ont tout d'abord permis de se familiariser avec le TEOM et son mode de fonctionnement au travers de plusieurs études concernant cet appareil. Ces recherches ont mis en évidence des restrictions d'utilisation liées au TEOM qui ont servi à définir les caractéristiques du générateur à utiliser pour les essais. Dans la détermination de ce générateur, de nombreux contacts avec Ecomesure ont abouti à un choix. Mais l'indisponibilité de l'appareil a fait que finalement c'est le SMPS du LNE qui, répondant à ces critères, a été choisi.

La mise en place d'une nouvelle méthode pour étalonner le TEOM a demandé énormément de temps et de travail par le manque d'information disponible sur le sujet.

De plus, les appareils n'ayant pas été utilisés depuis trois ans il a fallu un temps conséquent pour se familiariser avec le SMPS et le CPC et les remettre en état de bon fonctionnement.

Les différents essais ont montré que :

- ✓ l'utilisation d'une sphère de dilution avant l'introduction de l'aérosol dans le TEOM n'est pas une bonne méthode, car elle entraîne une dilution et des pertes de l'aérosol qui empêchent de collecter une masse suffisante pour être pesée.
- ✓ l'aérosol évolue en fonction du temps à l'intérieur de la sphère de dilution (agglomération des particules fines, dépôts des plus grosses particules vers le fond...), ce qui ne permet pas d'obtenir une bonne reproductibilité des essais.

Par conséquent, ces essais préliminaires semblent montrer que l'utilisation d'un générateur de particules dont le débit volumique est de l'ordre de grandeur de celui du TEOM (3 l/min) reste la meilleure solution.

De ce fait, un générateur de particules PALAS Aerosol Generator GFG-1000 a été commandé en fin d'année 2005 et des essais seront effectués avec cet appareil au cours de l'année 2006.

9. BIBLIOGRAPHIE

[1] Rapport de l'Ecole des Mines de Douai, LCSQA, Décembre 2000

[2] Compte-rendu d'avancement des travaux de l'Ecole des Mines de Douai, LCSQA, Juin 2001 Convention n°43/2000

[3] Caractérisation de l'aérosol atmosphérique en milieu urbain, étude n°9, INERIS, LCSQA, Décembre 2003, Convention 03000115

[4] Recherche d'une méthode d'étalonnage en masse du TEOM 1400 AB, rapport de Myriam d'HELF, DESS QCBA / LNE, 2002

[5] Mise en place d'une chaîne nationale d'étalonnage pour la pollution particulaire en masse, Etude menée sur un TEOM 1400a, Catherine Perrot, Tatiana Macé, LNE, LCSQA, Décembre 1999

[6] Comparaison entre un prélèvement sur filtre et un préleveur automatique (TEOM), M. B. Attoui, A. Renoux, C. Parfait, G. Tymen, Chambre, Université Paris XII

10. ANNEXES

10.1. ANNEXE 1 : PROGRAMME DE TRAVAIL 2005

Thème I : Assurance qualité

Programme pluriannuel

ETUDE DE FAISABILITE SUR LA MISE AU POINT D'UN DISPOSITIF D'ETALONNAGE DES APPAREILS MESURANT LES CONCENTRATIONS MASSIQUES DE PARTICULES

1. CONTEXTE

Actuellement, les réseaux de surveillance de la qualité de l'air mesurent les concentrations massiques de particules ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) en continu avec des appareils automatiques qui sont en majorité des TEOM.

L'étalonnage de ces appareils TEOM est réalisé par l'intermédiaire de cales étalons raccordés au système international (masse) et de débitmètre volumique.

Toutefois, l'utilisation des cales étalons pour vérifier la constante d'étalonnage de l'appareil pose entre autres les problèmes suivants :

- Les cales étalons pèsent de l'ordre de 80 mg alors que les concentrations massiques de particules dans l'air ambiant sont plutôt de l'ordre de quelques μg ,
- L'étalonnage avec une cale étalon ne permet pas de prendre en compte tout le système de prélèvement en amont de la mesure de la masse.

2. OBJECTIF

L'objectif est de réaliser une étude de faisabilité sur la mise en place d'un générateur de particules de référence destiné à étalonner les appareils de mesure des concentrations massiques particulières dans l'air ambiant.

3. TRAVAUX PROPOSES POUR 2005

La première étape consistera à réaliser une synthèse bibliographique des études menées dans le cadre de l'étalonnage des appareils mesurant les concentrations massiques de particules (en particulier les appareils de type TEOM et de type jauge β) au niveau français, mais également au niveau international.

A partir de cette synthèse bibliographique, la deuxième étape consistera à réaliser une étude de faisabilité sur la mise en place d'un générateur de particules de référence et à proposer des essais préliminaires à effectuer avec les matériels disponibles au LNE.

La troisième étape consistera à réaliser ces essais préliminaires et à en tirer des premières conclusions sur la faisabilité de la mise en place d'un générateur de particules de référence.

4. COLLABORATION

- MEDD, ADEME
- Fabricants
- Université

5. DUREE DES TRAVAUX

L'étude de faisabilité sera effectuée sur un an.

6. PERSONNEL EN CHARGE DES TRAVAUX

- Tatiana Macé (coordinateur)
- Samia Yahiaoui

10.2. ANNEXE 2 : AMELIORATIONS APORTEES AU TEOM : LE SYSTEME SES ET LE SYSTEME FDMS

LE SYSTEME SES

Le principe est basé sur l'utilisation d'un sécheur Nafion Permapure avec passage à contre courant de gaz sec, pour obtenir un gradient d'humidité. L'ensemble est classiquement monté à la verticale, dans l'alignement de la tête PM₁₀. L'encombrement induit peut s'avérer être problématique pour des stations multipolluants dont l'espace libre est limité (abaissement nécessaire de 60 cm minimum de la microbalance déjà en place).

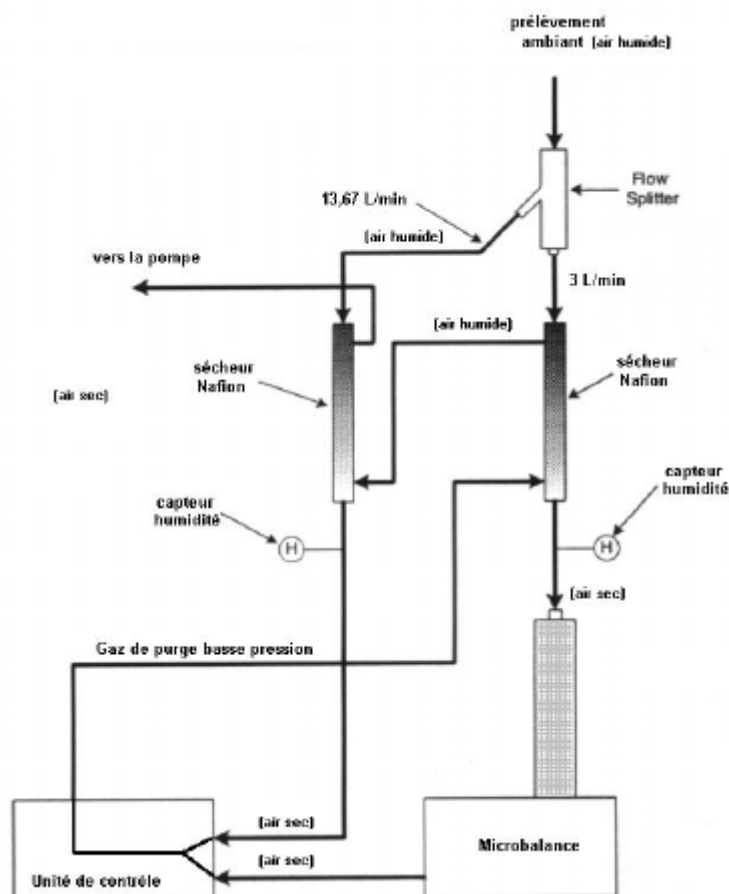
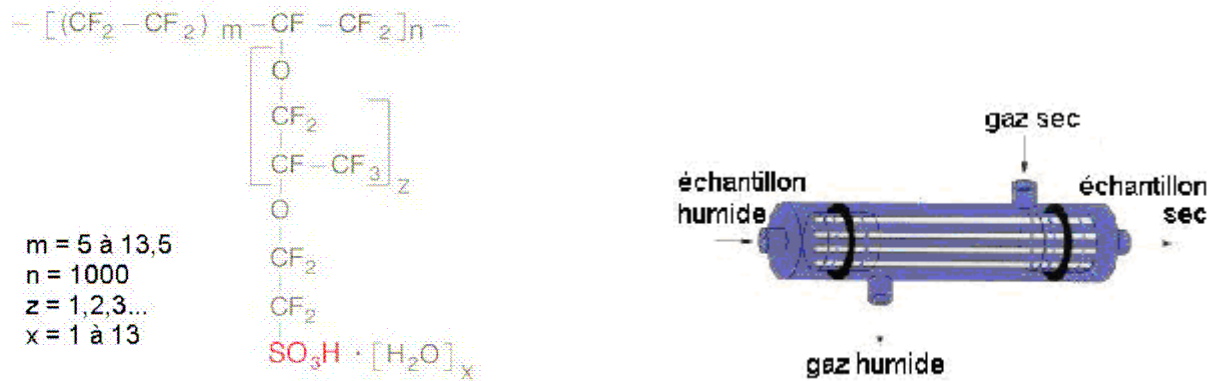


Schéma fluide du TEOM équipé du système SES

Le Nafion est un polymère à base Téflon comprenant des groupements acides sulfoniques. La forte affinité spécifique du groupement acide sulfonique avec l'eau permet de sécher un gaz, par migration des molécules d'eau sur les groupes acides de la membrane. Le processus n'est donc pas la perméation mais est régi par la pression partielle en vapeur d'eau de part et d'autre de la membrane Nafion.



Structure chimique et principe fluidique du sécheur NAFION Permapure

LE SYSTEME FDMS



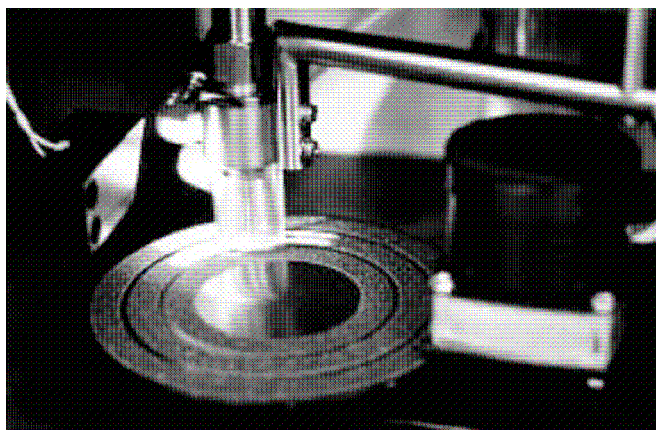
Module FDMS installé sur un TEOM 1400 AB

10.3. ANNEXE 3 : PHOTOS DU SSPD (SMALL-SCALE POWDER DISPENSER)

Le SSPD est commercialisé par TSI.



Le SSPD



Plaque tournante placée au-dessous du tube d'aspiration

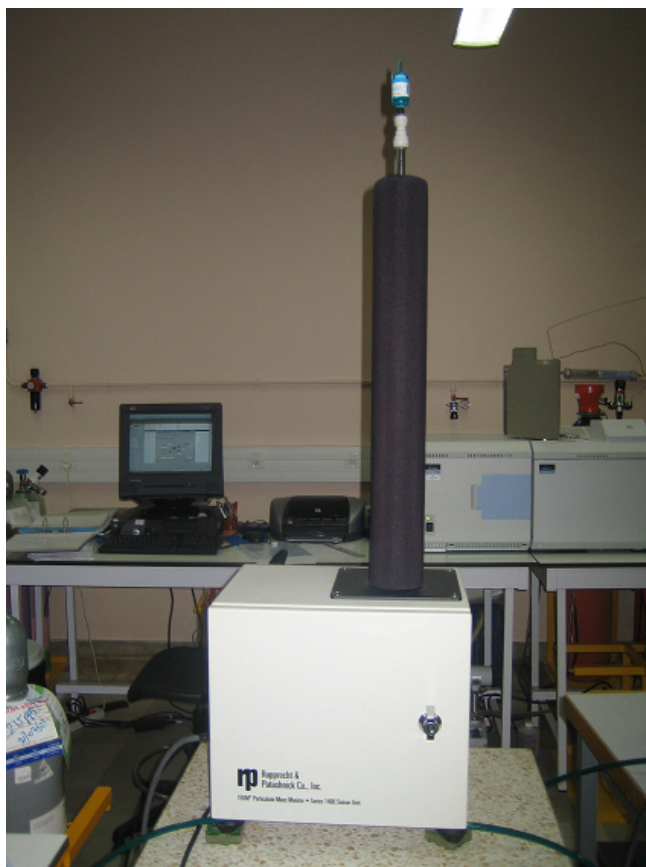
10.4. ANNEXE 4 : PHOTOS DES APPAREILS DU MONTAGE POUR L'ETALONNAGE DU TEOM



Système de génération de l'aérosol (ASS – COA – SMPS – CPC)



Sphère de dilution de 15 litres



Le TEOM

