



Développement d'un dispositif de contrôle des appareils mesurant les concentrations massiques de particules

**Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l’Air**

**DEVELOPPEMENT D’UN DISPOSITIF DE CONTROLE
DES APPAREILS MESURANT LES CONCENTRATIONS
MASSIQUES DE PARTICULES**

Lola Brégonzio-Rozier, François Gaie-Levrel, Tatiana Macé (LNE)

Décembre 2018



LE LABORATOIRE CENTRAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITÉ DE L'AIR

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué des laboratoires de l'IMT Lille Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches à la demande du Ministère chargé de l'environnement, et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique ont été financés par la Direction Générale de l'Énergie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère chargé de l'Environnement. Ils 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 au ministère et 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.

TABLE DES MATIERES

RESUME	6
REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS.....	8
1. CONTEXTE	9
2. RAPPEL DE L'ETUDE 2017	9
3. OBJECTIF DE L'ETUDE 2018.....	9
4. DESCRIPTION DES GENERATEURS PORTABLES (GARP ET MINI GARP).....	10
5. RESULTATS	11
5.1 Caractérisation du GARP par méthode gravimétrique pour un débit de prélèvement de 1 m ³ /h	11
5.1.1 Description du porte-filtre externe utilisé	11
5.1.2 Résultats	11
5.2 Caractérisation du mini GARP par méthode gravimétrique pour un débit de prélèvement de 1 m ³ /h	12
5.3 Couplage du mini GARP au FIDAS 200	13
5.3.1 Présentation du FIDAS 200.....	13
5.3.2 Résultats	13
6. CONCLUSION GENERALE	15

RESUME

Le TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) est un appareil de mesure très répandu au sein des Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). 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 pesées postérieures au prélèvement.

A l'heure actuelle, cet appareil est étalonné à l'aide de cales étalons raccordées au système international. Ces cales, ayant des masses de l'ordre de 80-100 mg, permettent de vérifier la constante d'étalonnage de la microbalance. Le contrôle de sa linéarité est effectué grâce à trois cales étalons ayant des différences de masses de l'ordre de la dizaine de mg. En considérant un débit volumique du TEOM-FDMS de 3 L/min, la valeur limite pour les PM_{10} ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne journalière) représente une masse particulaire d'environ 2 μg sur 15 min de prélèvement. La différence de masse des cales étalons n'est donc pas représentative des masses particulaires atmosphériques prélevées sur un quart d'heure. De plus, l'utilisation de ces cales ne permet pas de prendre en compte un éventuel dysfonctionnement du système de prélèvement en amont de la mesure de la masse et du système de filtration intrinsèque à la microbalance.

Par conséquent, le LNE a proposé de développer une méthode de contrôle en masse des TEOM-FDMS qui consiste à :

- Générer et prélever des particules ayant des concentrations connues et stables dans le temps (prélèvement de masses particulaires inférieures à 5 mg (gamme du « mg ») et à 100 μg (gamme du « μg ») sur une demi-heure de prélèvement), d'une part sur le filtre du TEOM-FDMS en passant par le système de prélèvement (hors tête de prélèvement), et d'autre part sur un filtre externe,
- Puis comparer les masses mesurées par le TEOM-FDMS avec les masses « vraies » mesurées par la méthode gravimétrique sur le filtre externe.

Au regard de l'ensemble des éléments précités, cette méthode a été développée pour contrôler les TEOM-FDMS (1) - pour une gamme de masse inférieure à celle des cales étalons et (2) - réalisable dans des conditions proches de leur fonctionnement « normal ».

Le protocole d'utilisation du générateur de particules (GARP), optimisé par les expériences menées sur le terrain entre 2013 et 2017, est de plus adapté au contrôle des jauges radiométriques, permettant une utilisation versatile du système.

En 2018, afin de déterminer ses performances métrologiques en lien avec les mesures effectuées par les jauges radiométriques, le générateur a été caractérisé au laboratoire par l'utilisation de la méthode gravimétrique à un débit de prélèvement égal à celui des jauges radiométriques, soit $1 \text{ m}^3/\text{h}$. Les résultats liés à cette caractérisation ont conduit à des écarts-types relatifs de reproductibilité compris entre 5,9 % et 16,9 %.

De plus, afin de prendre en compte le retour d'expérience des AASQA à l'issue du déploiement du GARP sur le terrain en 2017, le dispositif a été optimisé pour le rendre plus léger et compact. Cette version miniaturisée est appelée mini GARP.

La caractérisation du mini GARP à un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ a conduit à des écarts-types relatifs de reproductibilité proches de ceux obtenus pour la caractérisation du GARP à ce même débit de prélèvement. La version miniaturisée du GARP permet donc de conserver les critères de stabilité et de reproductibilité en termes de génération d'aérosol caractéristique du GARP dans le cas d'un temps de génération de 36 minutes, utilisé pour le contrôle des jauges radiométriques.

En complément des TEOM-FDMS et des jauges radiométriques, on observe une utilisation croissante par les AASQA d'instruments optiques tels que le FIDAS 200 (PALAS) pour la mesure des concentrations massiques particulières. Ainsi, dans une volonté de rendre ce système toujours plus versatile, le mini GARP a été couplé à un FIDAS 200. Ce couplage a montré que la distribution granulométrique en nombre de l'aérosol généré par le mini GARP est principalement située dans une gamme de taille non détectée par le FIDAS, à savoir dans une gamme de diamètres inférieurs à 180 nm. Par conséquent, le mini GARP, dans son état actuel, n'est pas utilisable pour le contrôle d'instruments optiques tels que le FIDAS 200 utilisé pour mesurer les concentrations massiques particulières.

REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS

Le LNE souhaite remercier Airparif pour le prêt d'un FIDAS 200 (PALAS).

1. CONTEXTE

Les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l’Air (AASQA) ont pour mission de mesurer les concentrations des polluants dans l’air ambiant. Parmi ces polluants, se trouvent les particules dont il convient de mesurer les concentrations massiques conformément à la directive européenne 2008/50/CE. Au sein du LCSQA, le LNE a pour mission d’assurer la traçabilité des mesures de concentrations massiques de particules réalisées par les AASQA.

Pour répondre à cette mission pour la mesure des particules, le LNE a proposé de développer une méthode de contrôle en masse des analyseurs automatiques de particules qui consiste à :

- Générer des particules ayant des concentrations connues et stables dans le temps (prélèvement de masses particulaires inférieures à 5 mg (gamme du « mg ») et à 100 µg (gamme du « µg ») sur une demi-heure de prélèvement),
- Comparer les masses mesurées par les analyseurs de particules avec les masses « vraies » mesurées par la méthode gravimétrique.

2. RAPPEL DE L’ETUDE 2017

En 2017, afin d’approfondir l’évaluation du générateur de particules (GARP) lors d’applications directes sur le terrain, ce dernier a été envoyé successivement à 7 AASQA volontaires qui ont réalisé des essais sur différents types d’instruments mesurant les concentrations massiques de particules (TEOM/TEOM-FDMS et jauges radiométriques). Il a été observé que 67 % des masses mesurées par les TEOM/TEOM-FDMS et 65 % des mesures des jauges radiométriques étaient comprises dans les zones de référence définies par la méthode gravimétrique pour les temps de génération 12, 24 et 36 minutes.

Ces essais ont ainsi montré que le GARP du LNE offre de nouvelles perspectives dans la compréhension du fonctionnement et des données des appareils mesurant en continu la concentration massique des particules en suspension dans l’air. Il permet une vérification complète de la chaîne de mesure, du prélèvement au système de mesure, renforçant ainsi la fiabilité des mesures. Il a également été mis en évidence que cet appareil nécessitait une miniaturisation supplémentaire pour diminuer son poids et le rendre plus facilement transportable par les AASQA sur le terrain.

3. OBJECTIF DE L’ETUDE 2018

L’objectif final de ce projet est de développer un générateur de particules versatile dont les propriétés métrologiques (répétabilité et reproductibilité) devront être en adéquation avec les caractéristiques techniques des TEOM-FDMS et des jauges radiométriques. Ceci implique :

- de caractériser le générateur de particules en termes de masses particulières générées (masses de référence) et d'évaluer sa répétabilité et sa reproductibilité en se basant sur la méthode de référence qui est la méthode gravimétrique.
- de comparer les valeurs mesurées par le TEOM-FDMS ou la jauge radiométrique avec les masses de référence et leurs incertitudes associées.

En considérant l'ensemble des éléments précités, cette méthode devra également permettre le contrôle des TEOM-FDMS et des jauges radiométriques dans des conditions proches de leur fonctionnement « normal ». De plus, cette méthode doit tenir compte des spécificités des AASQA, puisqu'elle doit pouvoir être facilement mise en œuvre directement par les AASQA dans les stations de mesure.

Afin de déterminer les performances métrologiques de ce dispositif en lien avec les mesures effectuées par les jauges radiométriques, le générateur a été caractérisé en laboratoire par méthode gravimétrique à un débit de prélèvement égal à celui des jauges radiométriques, soit $1 \text{ m}^3/\text{h}$. Afin de prendre en compte le retour d'expérience des AASQA à l'issue de son déploiement sur le terrain en 2017, le dispositif a, de plus, été optimisé pour le rendre plus léger et compact. Cette version miniaturisée est appelée mini GARP.

La caractérisation du dispositif à un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ a ainsi été réalisée sur le GARP et sur sa version miniaturisée (mini GARP). Un couplage du mini GARP à un instrument optique utilisé par les AASQA pour les mesures PM (FIDAS 200) a également été réalisé. Les résultats des caractérisations et du couplage font l'objet de ce rapport.

4. DESCRIPTION DES GENERATEURS PORTABLES (GARP ET MINI GARP)

Le dispositif portable et autonome développé est appelé Générateur d'Aérosol de Référence Portable, ou GARP.

Le générateur utilisé est un nébuliseur du type « Constant Output Atomizer » (modèle 3076, TSI) et permet de générer un aérosol polydispersé à partir de la nébulisation d'une solution. L'aérosol produit traverse ensuite un sécheur par diffusion (modèle 3062, TSI) permettant de sécher les particules.

Dans l'objectif de rendre ce dispositif plus léger et plus compact, et donc, plus facilement transportable, un dispositif miniaturisé du GARP, appelé mini GARP, a été développé en 2018. Pour réaliser cette miniaturisation, le nébuliseur modèle 3076 de TSI et les cylindres de gaz ont été remplacés par un nébuliseur de plus petite taille couplé à une pompe. Le sécheur par diffusion modèle 3062 de TSI a été remplacé par un modèle possédant 3 tubes internes.

La caractérisation de ces 2 dispositifs à un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ est présentée dans la partie « résultats » de ce rapport. Dans ces systèmes, l'aérosol est généré à 3 L/min et 5 L/min pour le GARP et le mini GARP, respectivement. Le débit de prélèvement total ($1 \text{ m}^3/\text{h}$, soit 16,67 L/min) a été complété par un flux d'air ambiant filtré via l'utilisation d'un filtre HEPA.

5. RESULTATS

Afin de déterminer les performances métrologiques de ce dispositif en lien avec les mesures effectuées par les jauges radiométriques, les générateurs (GARP et mini GARP) ont été caractérisés en laboratoire par méthode gravimétrique à un débit de prélèvement égal à celui des jauges radiométriques, soit $1 \text{ m}^3/\text{h}$.

Un couplage du mini GARP à un instrument optique utilisé par les AASQA pour les mesures PM (FIDAS 200, PALAS) a également été réalisé.

5.1 Caractérisation du GARP par méthode gravimétrique pour un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$

Le générateur GARP a été caractérisé pour des temps de génération de 12, 24 et 36 minutes avec prélèvement à un débit de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ sur un filtre externe et mesure des masses par la méthode gravimétrique. Le débit de prélèvement utilisé correspond à celui des jauges radiométriques.

La méthode gravimétrique consiste à prélever les particules produites par le générateur de particules sur un filtre placé dans un porte-filtre externe et à peser ce filtre sur une balance de précision. Elle permet : (1) - de déterminer les masses de référence de particules générées, (2) - de déterminer les incertitudes de répétabilité et de reproductibilité dans le temps du générateur de particules.

Dans le cadre de cette caractérisation, 9 mesures par temps de génération (12, 24 et 36 minutes) ont été réalisées, soit un total de 27 mesures.

5.1.1 Description du porte-filtre externe utilisé

Pour réaliser la caractérisation par la méthode gravimétrique de cette étude, un porte filtre classique de 47 mm a été utilisé avec des filtres « Pallflex® » de type « Emfab™ TX40HI20-WW » constitués de microfibres de verre borosilicate renforcées avec un tissu de verre tissé et collé grâce à du PTFE.

5.1.2 Résultats

Le tableau 1 présente les valeurs moyennes et le traitement statistique global des données effectué selon la norme ISO 5725-2 en termes de reproductibilité ($k=1$) sur les 9 essais réalisés pour chaque temps de prélèvement de 12, 24 et 36 min avec une solution de KCl à 0,1 g/L.

Tableau 1 Traitement statistique global effectué selon la norme ISO 5725-2 des masses de référence obtenues sur 9 essais pour des temps de prélèvement de 12, 24 et 36 min ($k=1$) pour une solution de KCl à 0,1 g/L

		Valeur moyenne (μg)	Ecart-type de reproductibilité	
			Absolu (μg)	Relatif (%)
Temps de génération	12 min	38,9	6,6	16,9
	24 min	80,2	11,8	14,7
	36 min	110,1	6,5	5,9

Dans le cadre des essais effectués, les écarts-types relatifs de reproductibilité sont compris entre 5,9 % et 16,9 % pour les masses de référence. Ainsi, cette caractérisation globale permet de déterminer un domaine de masse de référence pour les trois temps de prélèvement, à savoir $38,9 \pm 6,6 \mu\text{g}$; $80,2 \pm 11,8 \mu\text{g}$ et $110,1 \pm 6,5 \mu\text{g}$ à 12, 24 et 36 min respectivement. Les incertitudes associées correspondent à l'écart-type de reproductibilité ($k=1$). Dans ce cadre, les résultats liés à la caractérisation du générateur grâce à la méthode gravimétrique à un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ ont conduit à des écarts-types relatifs de reproductibilité proches de ceux mesurés en 2017.

5.2 Caractérisation du mini GARP par méthode gravimétrique pour un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$

A l'instar du GARP, le générateur mini GARP a été caractérisé pour un temps de génération de 36 minutes avec prélèvement à un débit de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ sur un filtre externe et mesure des masses obtenues par la méthode gravimétrique. Le débit de prélèvement utilisé correspond à celui des jauges radiométriques.

Dans le cadre de cette caractérisation, 9 mesures à un temps de génération de 36 minutes ont été réalisées. Le tableau 2 présente les valeurs moyennes et le traitement statistique global des données effectué selon la norme ISO 5725-2 en termes de reproductibilité ($k=1$) sur les 9 essais réalisés pour un temps de génération de 36 min avec une solution de KCl à 0,1 g/L.

Tableau 2 Traitement statistique global, effectué selon la norme ISO 5725-2 sur les 9 essais réalisés pour un temps de génération de 36 min ($k=1$) pour une solution de KCl à 0,1 g/L

		Valeur moyenne (μg)	Ecart-type de reproductibilité	
			Absolu (μg)	Relatif (%)
Temps de génération	36 min	122,7	8,0	6,5

Dans le cadre des essais effectués, l'écart-type relatif de reproductibilité ($k=1$) est de 6,5 % pour un temps de génération de 36 minutes. Dans ce cadre, les résultats liés à la caractérisation du mini GARP à un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ grâce à la méthode gravimétrique ont conduit à un écart-type relatif de reproductibilité proche de celui obtenu pour la caractérisation du GARP à ce même débit de prélèvement. La version miniaturisée du GARP permet donc de conserver les mêmes critères de stabilité et de reproductibilité en termes de génération d'aérosol que ceux du GARP dans le cas d'un temps de génération de 36 minutes utilisé pour le contrôle des jauges radiométriques.

5.3 Couplage du mini GARP au FIDAS 200

En complément des TEOM-FDMS et des jauges radiométriques, on observe une utilisation croissante par les AASQA d'instruments optiques tels que le FIDAS 200 (PALAS) pour mesurer les concentrations massiques particulières. Ainsi, dans une volonté de rendre le système de génération toujours plus versatile, le mini GARP a été couplé à un FIDAS 200.

5.3.1 Présentation du FIDAS 200

Le FIDAS 200 est un granulomètre optique qui permet de mesurer en temps réel la distribution granulométrique en nombre des particules pour des diamètres compris entre 180 nm à 18 μm . Les diamètres sont déterminés par mesure de l'intensité de la lumière diffusée par les particules. La concentration en nombre (exprimée en particules par cm^3) est déterminée par mesure de la fréquence de détection de chaque classe de taille de particule dans la chambre de mesure. La concentration en masse des particules (exprimée en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) est ensuite déterminée par conversion des valeurs en nombre mesurées. Cette conversion implique de faire certaines hypothèses sur les paramètres physiques des particules tels que leur indice de réfraction, leur masse volumique et leur forme.

5.3.2 Résultats

La distribution granulométrique en nombre d'aérosols de KCl mesurée par le FIDAS lors de son couplage avec le mini GARP est présentée en Figure 1. La distribution granulométrique en nombre mesurée par un spectromètre de mobilité électrique (SMPS) est aussi présentée pour permettre la comparaison.

Le SMPS est un instrument permettant de caractériser la granulométrie en nombre de particules en phase aérosol avec une gamme de mesure allant de quelques nanomètres à 1 μm . Cet instrument est composé d'un analyseur différentiel de mobilité électrique (DMA), permettant de sélectionner un diamètre de mobilité électrique, et d'un compteur à noyaux de condensation (CNC) permettant de compter le nombre de particules sélectionnées.

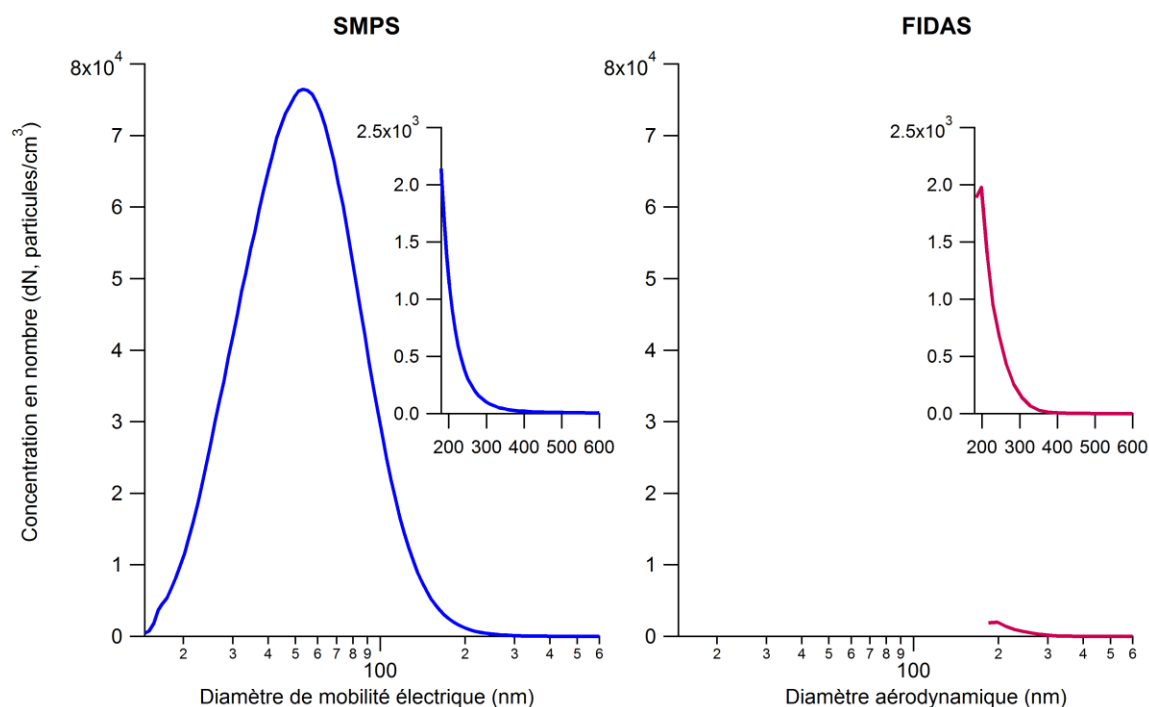


Figure 1 - Distributions granulométriques en nombre d'aérosols de KCl générés par le mini GARP à partir d'une solution à 0,1 g/L mesurées par le SMPS (à gauche) et le FIDAS (à droite).

La Figure 1 montre que la distribution granulométrique en nombre de l'aérosol généré par le mini GARP (une distribution granulométrique similaire est obtenue avec le GARP) est principalement située dans une gamme de taille non détectée par le FIDAS, c'est-à-dire, dans des diamètres inférieurs à 180 nm. On constate ainsi sur la Figure 1 que le FIDAS ne peut mesurer qu'une partie de la distribution granulométrique de l'aérosol généré. La concentration en masse des particules étant déterminée par le FIDAS en convertissant les valeurs en nombre mesurées, il n'est donc pas possible pour le FIDAS d'avoir une mesure de la concentration massique représentative de l'aérosol généré. Il apparaît donc clairement que le mini GARP (et le GARP, les distributions granulométriques d'aérosols de KCl générés étant similaires) n'est, dans son état actuel, pas utilisable pour le contrôle d'instruments optiques tels que le FIDAS 200 pour mesurer les concentrations massiques particulières.

6. CONCLUSION GENERALE

L'objectif final de cette étude est de développer un générateur de particules versatile et de le caractériser afin de pouvoir l'utiliser ensuite pour le contrôle d'instruments mesurant les concentrations massiques de particules tels que les TEOM-FDMS et les jauges radiométriques. Ce développement implique :

- de caractériser le générateur de particules en termes de masses particulières générées (masses de référence) et d'évaluer sa répétabilité et sa reproductibilité en se basant sur la méthode de référence qui est la méthode gravimétrique.
- de comparer les valeurs mesurées par le TEOM-FDMS ou la jauge radiométrique avec les masses de référence et leurs incertitudes associées.

Ce contrôle des TEOM-FDMS et des jauges radiométriques doit pouvoir être réalisable dans des conditions proches du fonctionnement « normal » des instruments. De plus, cette méthode doit tenir compte des spécificités des AASQA, puisqu'elle doit pouvoir être facilement mise en œuvre directement par les AASQA dans les stations de mesure.

Afin de déterminer les performances métrologiques de ce dispositif en lien avec les mesures effectuées par les jauges radiométriques, le générateur a été caractérisé au laboratoire par méthode gravimétrique à un débit de prélèvement égal à celui des jauges radiométriques, soit $1 \text{ m}^3/\text{h}$. Les résultats liés à cette caractérisation ont conduit à des écarts-types relatifs de reproductibilité compris entre 5,9 % et 16,9 %.

Afin de prendre en compte le retour d'expérience des AASQA à l'issue du déploiement du GARP sur le terrain en 2017, le dispositif a, de plus, été optimisé pour le rendre plus léger et compact. Cette version miniaturisée est appelée mini GARP.

La caractérisation du mini GARP à un débit de prélèvement de $1 \text{ m}^3/\text{h}$ a conduit à un écart-type relatif de reproductibilité proche de celui obtenu pour la caractérisation du GARP à ce même débit de prélèvement. La version miniaturisée du GARP permet donc de conserver les critères de stabilité et de reproductibilité en termes de génération d'aérosol caractéristique du GARP dans le cas d'un temps de génération de 36 minutes utilisé pour le contrôle des jauges radiométriques.

En complément des TEOM-FDMS et des jauges radiométriques, et dans une volonté de rendre ce système toujours plus versatile, le mini GARP a été couplé à un FIDAS 200. Ce couplage a montré que la distribution granulométrique en nombre de l'aérosol généré par le mini GARP est principalement située dans une gamme de taille non détectée par le FIDAS, à savoir dans une gamme de diamètres inférieurs à 180 nm. Par conséquent, le mini GARP, dans son état actuel, n'est pas utilisable pour le contrôle d'instruments optiques tels que le FIDAS 200 utilisé pour mesurer les concentrations massiques particulières.



direction et secrétariat du LCSQA

INERIS - parc technologique Alata - BP 2 - F60550 Verneuil-en-Halatte
tél. 03 44 55 64 04 - www.lcsqa.org