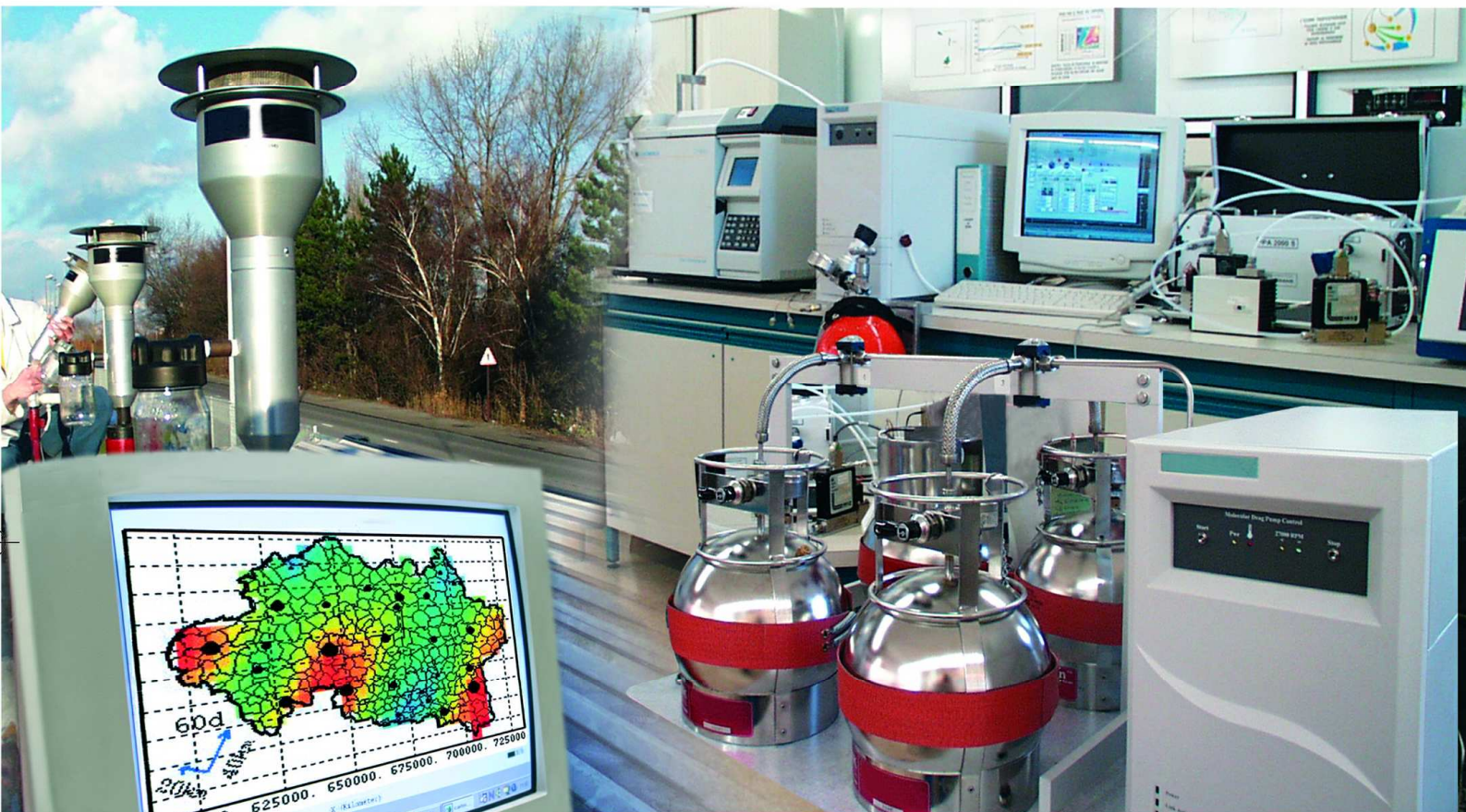




Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Métrologie des particules PM_{10} et $PM_{2.5}$

**Suivi et optimisation de l'utilisation des TEOM-FDMS :
Efficacité de séchage des modules FDMS**

Programme 2011

S. VERLHAC, A. USTACHE, O. FAVEZ





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'École 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, 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 de l'Écologie, du Développement durable, des Transports et du Logement. 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 MEDDTL 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.



EFFICACITE DE SECHAGE DES MODULES FDMS

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Métrologie des particules PM₁₀ et PM_{2.5}

Programme financé par la
Direction Générale de l'Energie et du Climat (DGEC)

2011

S. VERLHAC, R. AUJAY, A. USTACHE, O. FAVEZ (LCSQA/INERIS)

O. NOTEUIL, C. BOULLANGER, S. GANDAR (MADININAIR)

G. GRIGNION (QUALIT'AIR CORSE)

Ce document comporte 33 pages (hors couverture et annexes)

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	S. Verlhac, A. Ustache, O. Favez	E. Leoz-Garziandia, O. Aguerre	N. Alsac
Qualité	Technicien et ingénieurs des unités CIME et NOVA Direction de risques chroniques	Responsables des unités CIME et NOVA Direction de risques chroniques	Responsable du pôle CARA Direction de risques chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

RESUME	7
1. INTRODUCTION	8
2. CONTEXTE ET MODALITES DE L' ETUDE EN MARTINIQUE	10
3. INFLUENCE DE LA TEMPERATURE DE LA STATION	14
4. INLUENCE DE LA DEPRESSION EN AMONT DE LA POMPE	15
4.1 Dispositif expérimental	16
4.2 Paramètres suivis.....	16
4.3 Résultats	18
5. COUPLAGE DE DEUX SECHEURS EN SERIE	20
5.1 Dispositif expérimental	20
5.2 Essais préliminaires en laboratoire	21
5.3 Résultats des essais sur site.....	22
6. INTERCOMPARAISONS DE MESURES PM	24
6.1 Résultats de la campagne intensive.....	24
6.2 Comparaison sur le long terme	28
7. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	29
8. REFERENCES	32
9. LISTE DES ANNEXES	33

RESUME

Depuis le 1^{er} janvier 2007, les TEOM-FDMS sont très largement utilisés en routine par l'ensemble des associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA) pour la surveillance des PM₁₀ et des PM_{2.5}. Dans le cadre du déploiement et de la mise en œuvre de ces instruments, le LCSQA/INERIS est notamment chargé du suivi et de l'optimisation de leur utilisation au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air, ainsi que d'assurer la qualité des données produites en construisant une approche QA/QC basée sur celle décrite dans les normes utilisées pour la mesure des polluants gazeux inorganiques (O₃, NO_x, SO₂, CO). Ce travail se concrétise notamment par la rédaction d'un guide pour l'utilisation du TEOM-FDMS, dont une nouvelle version a été élaborée en 2010, en partenariat avec les AASQA.

En 2011, le LCSQA/INERIS a poursuivi son travail d'évaluation sur le terrain des TEOM-FDMS avec notamment pour objectif de vérifier la validité des critères définis par le guide d'utilisation dans le cas d'un environnement climatique « extrême » (i.e. chaud et humide). Le présent rapport restitue les principaux résultats de ces travaux, en portant l'accent sur les enseignements tirés de tests de terrain réalisés en Martinique en collaboration avec Madinair, permettant en outre d'étudier l'influence de l'humidité relative sur les performances du sécheur dans le cas d'un aérosol atmosphérique réel très humide (pour faire suite à des travaux réalisés en laboratoire en 2009).

Ces résultats renforcent les recommandations préconisées par le guide d'utilisation de 2010. En particulier :

- Les oscillations des températures de point de rosée échantillon (en sortie de sécheur) sont corrélées aux oscillations constatées sur la température de la station (pour des températures de point de rosée ambiant stables). La température de fonctionnement des sécheurs FDMS a donc un impact direct sur l'efficacité de ces derniers et doit être surveillée/contrôlée attentivement, afin d'éviter un éventuel risque de surestimation de la concentration massique.
- L'utilisation de TEOM-FDMS présentant une dépression en amont de la pompe moins importante que -20 inHg (« pouces de mercure », unité utilisée par convention pour le TEOM-FDMS) peut conduire à une baisse rapide du rendement des sécheurs. Sur ce point, il est également à noter que différents retours d'expérience ont montré que le manomètre d'origine pouvait fortement dériver et, par ailleurs, présenter des fuites. Il est donc fortement conseillé de maintenir une dépression plus importante que -20 inHg, et de procéder à une vérification régulière du manomètre d'origine, voire de remplacer ce dernier (permettant en outre la mise en place d'un suivi de la dépression en routine).
- L'utilisation d'un TEOM-FDMS présentant une température de point de rosée échantillon autour de -5°C peut conduire à une légère surestimation de la concentration massique de PM (de l'ordre de 3 µg/m³ dans le cas présent d'un environnement très humide). Il semble donc opportun de maintenir un seuil limite d'intervention de -4°C pour ce paramètre.

Enfin, la surveillance de l'humidité relative en sortie de sécheur (non suivie jusqu'à présent) pourrait permettre d'identifier plus facilement une dégradation partielle de ce dernier.

1. INTRODUCTION

Les méthodes de référence pour l'évaluation des concentrations de particules définies dans le cadre de la directive européenne concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe, datée du 11 Avril 2008, sont basées sur la mesure gravimétrique différée et décrites dans les normes NF EN 12341 (pour les PM₁₀) et NF EN 14907 (pour les PM_{2,5}).

Ces méthodes manuelles sont onéreuses, difficiles à mettre en œuvre, et ne sont pas adaptées aux besoins d'information rapide (plusieurs jours de délai avant obtention du résultat de la mesure).

La mesure des concentrations de particules en France s'est donc développée sur la base de l'utilisation d'outils automatiques, principalement le TEOM 1400 (fabriqué initialement par R&P, puis désormais par Thermo Scientific), et dans une moindre mesure, la jauge Bêta (l'outil MP101M d'Environnement SA étant distribué en France jusqu'à début 2008).

Depuis 1997, un certain nombre d'études, menées notamment par le LCSQA, ont montré que le TEOM 1400 sous-estime la mesure de PM (PM₁₀ et PM_{2,5}) par rapport à la mesure par méthodes de référence⁽¹⁻³⁾. Cette sous-estimation est essentiellement due à la volatilisation d'espèces semi-volatiles lors de la mesure par TEOM, réalisée à 50°C afin d'éliminer l'eau présente sur les particules atmosphériques⁽²⁻⁵⁾. De plus, il a été montré que la relation entre les mesures de PM réalisées par TEOM et celles effectuées selon la méthode de référence n'est pas une relation linéaire simple⁽²⁻⁵⁾. En conséquence, il est apparu difficile d'adopter un facteur correctif pour les données du TEOM par rapport à la méthode de référence.

Dans le même temps, des solutions techniques ont fait leur apparition, et des démonstrations d'équivalence ont pu être réalisées, notamment en France par le LCSQA en association avec AIRPARIF et ATMOPACA en 2005 et 2006, pour deux outils :

- Le TEOM-FDMS de Thermo R&P, pour la mesure des PM₁₀ et des PM_{2,5}^(6, 7). Cet instrument correspond en réalité à un TEOM 1400 équipé d'un module FDMS (modèle 8500) permettant la prise en compte des espèces semi-volatiles tout en éliminant l'eau présente sur les particules⁽⁸⁾. Il est notamment pourvu d'un sécheur de type membrane Nafion®.
- La jauge radiométrique MP101M-RST d'Environnement SA pour la mesure des PM₁₀⁽⁹⁾.

Depuis 2007, ces deux instruments (TEOM-FDMS et MP101M-RST) constituent le socle de la mesure réglementaire de PM en France. Le LCSQA/INERIS s'est alors attaché à suivre le déploiement des TEOM-FDMS par le biais d'une assistance technique aux AASQA, se matérialisant notamment par la rédaction d'un guide d'utilisation mis à jour régulièrement⁽¹⁰⁾, ainsi que par la réalisation d'exercices de vérification de l'équivalence vis-à-vis de la méthode de référence⁽¹¹⁻¹³⁾.

L'ensemble de ces travaux ont permis d'identifier les différents points clés du bon fonctionnement des modules FDMS, au premier rang desquels :

- la minimisation des fluctuations de température dans l'environnement immédiat de l'instrument et le maintien d'une température inférieure à un seuil d'environ 27°C dans la station de mesure,

- le maintien d'une bonne dépression en amont de la pompe (une dépression inférieure à -20 inHg est actuellement recommandée),
- l'efficacité intrinsèque du sécheur utilisé dans le module FDMS (classiquement suivie au travers de la valeur de la température de point de rosée en aval du sécheur, ne devant pas dépasser -4°C, ainsi que par la différence de températures de point de rosée entre l'amont en l'aval de ce sécheur).

En 2011, les travaux du LCSQA/INERIS sur le TEOM-FDMS avaient notamment pour objectif de vérifier la validité de ces critères dans un environnement climatique « extrême », permettant en outre d'étudier l'influence de l'humidité relative de l'air échantillonné sur les performances du sécheur dans le cas d'un aérosol atmosphérique réel très humide (pour faire suite à des travaux réalisés en laboratoire en 2009 ⁽¹¹⁾). Madininair s'est rapidement porté volontaire pour accueillir ces tests de terrain.

Une seconde partie des travaux 2011 du LCSQA/INERIS visait à étudier plus particulièrement l'efficacité intrinsèque du sécheur en fonction de la typologie et des conditions climatiques du site de mesure. Ainsi, il était proposé de réaliser, en collaboration avec toute AASQA volontaire, un suivi temporel de l'évolution de paramètres clés du sécheur, dont les températures de point de rosée et l'humidité relative, pour plusieurs instruments équipés de sécheur neufs (ou très récents). Malheureusement, fin 2011, seules deux AASQA (Qualit'Air Corse et ASPA), avaient été en mesure d'assurer un envoi régulier des paramètres demandés, ne permettant pas la pleine réalisation de l'objectif initial de cette partie des travaux 2011. Par ailleurs, en raison de l'optimisation des sécheurs depuis fin 2009⁽¹¹⁾, il s'avère nécessaire d'étendre ce suivi sur une durée plus longue (3-4 ans) qu'initialement prévu afin d'en tirer tous les bénéfices escomptés. Néanmoins, quelques premières observations intéressantes concernant l'évolution temporelle de l'humidité relative en sortie de sécheur ont pu être réalisées dès 2011.

Le présent rapport restitue les principaux résultats de ces travaux, en portant l'accent sur les enseignements tirés des tests de terrain réalisés en Martinique. Après une description succincte de la particularité de l'utilisation du FDMS dans ce type d'environnement climatique, les trois points clés précités (température de la station, dépression en amont de la pompe et efficacité intrinsèque du sécheur) sont examinés à la lumière des résultats obtenus dans ces conditions climatiques « extrêmes ». Les résultats d'une campagne (de courte durée) d'intercomparaison de la mesure PM_{2.5} par TEOM-FDMS et méthode gravimétrique réalisée sur le site de Madininair choisi pour l'étude (*Bishop*) sont ensuite présentés, avant de synthétiser l'ensemble des observations ayant pu être réalisées en 2011 sur le fonctionnement des modules FDMS, sous la forme de recommandations d'utilisation.

2. CONTEXTE ET MODALITES DE L' ETUDE EN MARTINIQUE

Les tests de laboratoire réalisés en 2009 sur l'efficacité de séchage en fonction de l'humidité relative en entrée et de la dépression, dont les principaux résultats sont rappelés au chapitre 3 du présent rapport, avaient montré la nécessité de poursuivre ce type d'étude en conditions réelles⁽¹⁰⁾. Pour se faire, il était nécessaire de trouver un site d'étude répondant aux caractéristiques suivantes :

- présence d'une quantité relativement importante de particules dans l'air étudié (à l'inverse des tests de laboratoire réalisés sur un air dépourvu de particules) afin d'étudier les conditions réelles d'utilisation du TEOM-FDMS au sein des AASQA,
- température ambiante élevée afin de limiter l'influence des espèces semi-volatiles (telles que le nitrate d'ammonium) sur la mesure de masse par le TEOM-FDMS et ainsi de rendre possible l'interprétation de certains des résultats obtenus en terme d'impact de l'efficacité de séchage sur les concentrations mesurées,
- une température de point de rosée ambiante élevée (nécessitant une température et une humidité relative ambiantes élevées) afin de tester les limites d'application des critères préconisés par le guide LCSQA d'utilisation du TEOM-FDMS,
- capacité d'accueil d'un deuxième TEOM-FDMS en station afin de réaliser des exercices d'intercomparaison de deux systèmes placés dans une même ambiance de travail mais avec des paramètres de fonctionnement différents.

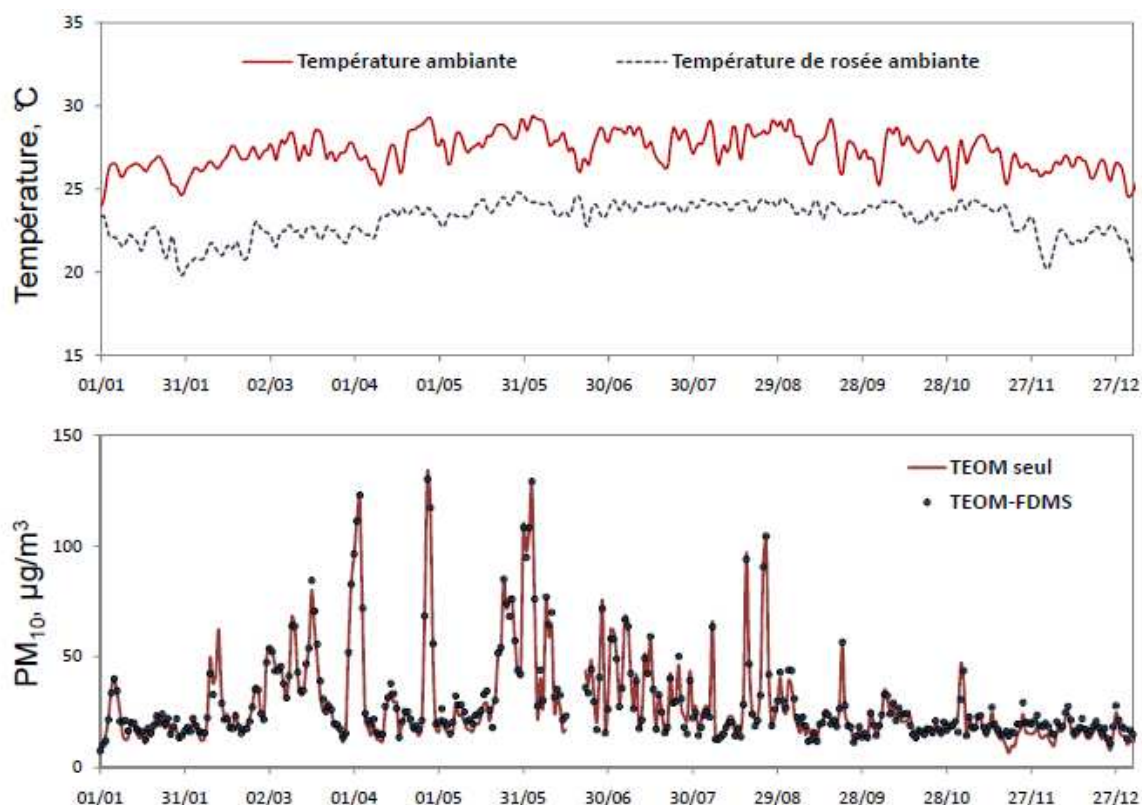


Figure 1 : Moyennes journalières des températures et températures de point de rosée ambiantes (en haut), ainsi que des concentrations de PM₁₀ non volatiles et totales (en bas) sur le site de Schoelcher (Madininair) en 2010.

C'est dans ce contexte que le choix du site d'étude s'est logiquement tourné vers un site urbain d'une AASQA d'un département d'Outre-Mer, et en particulier vers la station *Bishop* de Madinirair (cette AASQA ayant manifesté son intérêt pour l'étude dès 2010). Comme illustré par la Figure 1, les températures ambiantes et températures de point de rosée ambiantes sont globalement supérieures à 25°C et 20°C tout au long de l'année en Martinique ; et les mesures de PM₁₀ réalisées par TEOM seul et TEOM-FDMS y sont très similaires, suggérant un très faible impact des espèces semi-volatiles. Cette dernière hypothèse est partiellement vérifiée au travers des très faibles concentrations en nitrate d'ammonium mesurées ponctuellement sur cette station *Bishop* dans le cadre du programme CARA du LCSQA.⁽¹³⁾

A l'image de la métropole, Madinirair a procédé à l'installation du premier FDMS au sein de son réseau en 2007¹. Cette AASQA s'est depuis montrée très active sur l'optimisation de l'utilisation des TEOM-FDMS, notamment au travers de la réalisation de différents tests dont certains résultats sont repris dans le présent rapport.

Les tests réalisés en 2011 par le LCSQA et Madinirair sur le site de *Bishop* ont portés sur la fraction PM_{2.5}, afin de limiter l'influence des particules grossières (de masse importante et peu hydrophiles) sur les résultats obtenus. Un TEOM-FDMS (1400ab + 8500c) assure la mesure réglementaire des PM_{2.5} sur ce site depuis 2008. Ces mesures, permettant notamment le calcul de l'indice d'exposition moyen à Fort-de-France, ont été maintenues lors de l'étude (avec un sécheur d'âge moyen : installé 8 mois auparavant, et une dépression en amont de la pompe de -27inHg). Un TEOM-FDMS (1400ab + 8500c également) a été installé en parallèle et a permis la réalisation des tests selon les modalités suivantes :

- Du 2 au 3 septembre : installation
- Du 4 au 13 septembre : tests de l'influence de la dépression en amont de la pompe sur l'efficacité d'un sécheur neuf (cf. chapitre 4)
- Du 13 au 18 septembre : mise en œuvre de deux sécheurs en série (cf. chapitres 5 et 6)
- Du 18 au 22 septembre : tests de l'influence de la dépression en amont de la pompe sur l'efficacité d'un sécheur d'âge moyen (cf. chapitre 4)

L'influence de la température de la station sur le fonctionnement a été étudiée tout au long de l'étude (cf. chapitre 3).

La Figure 2 présente les variations temporelles des principaux paramètres de fonctionnement dont le suivi est recommandé par le guide LCSQA. Ces résultats sont discutés dans la suite du rapport.

¹ Parmi les trois autres AASQA des DOM, l'ORA Réunion a également mis en place les premiers FDMS en 2007 puis a pu rapidement équiper l'ensemble des TEOM de son réseau, alors que Gwad'Air et l'ORA Guyane n'a pu procéder à l'installation des premiers FDMS que très récemment.

Il est également à noter que des prélèvements sur filtre en vue de mesures gravimétriques à l'INERIS ont également été réalisés par le LCSQA au cours de cette période, puis par Madininair (cf. chapitre 6). Enfin, à partir du 23 sept. 2011, le TEOM-FDMS du LCSQA a été (ré)équipé d'un sécheur neuf dans l'objectif de réaliser une inter-comparaison sur le long-terme avec le TEOM-FDMS « officiel » de la station *Bishop* équipé, pour rappel, d'un sécheur plus ancien de 8 mois (cf. chapitre 6).

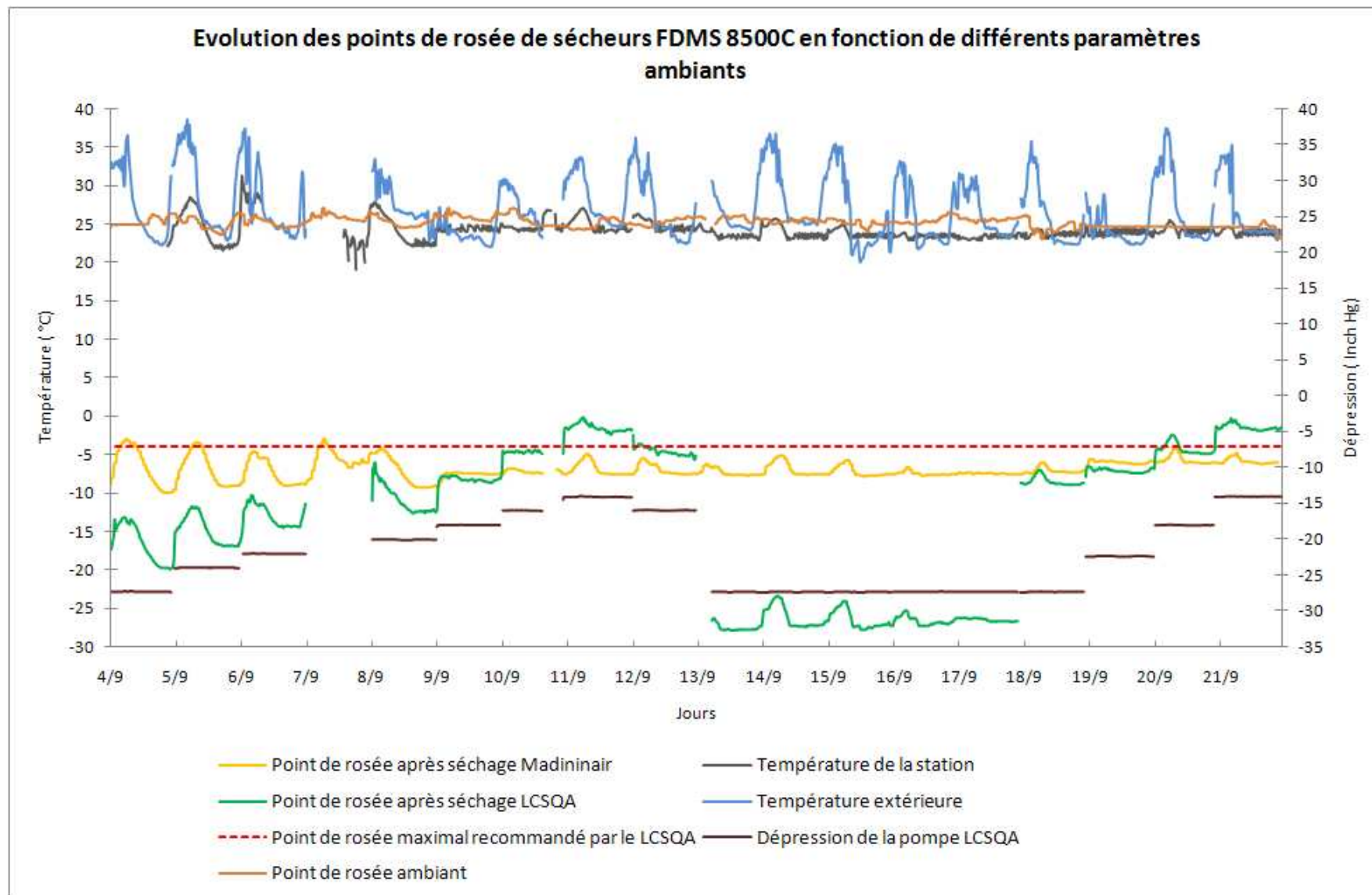


Figure 2 : Variation des principaux paramètres de fonctionnement à surveiller selon les recommandations du guide LCSQA

3. INFLUENCE DE LA TEMPERATURE DE LA STATION

L'influence de fortes variations de la température de la station autour de 25°C sur la qualité des mesures par TEOM-FDMS est désormais bien connue et illustrée par ailleurs⁽¹²⁾. Lors des expérimentations de terrain en Martinique, l'ensoleillement et la présence humaine à l'intérieur de la station perturbait la régulation en température de cette dernière, influençant les paramètres habituellement suivis pour le contrôle de l'efficacité de séchage. Comme illustré par la Figure 2, la forte amplitude de la température interne des premiers jours s'accompagne en effet de fortes variations de la température de point de rosée mesurée en sortie de sècheur des deux modules FDMS. A l'inverse la relative stabilité de la température interne lors des deux dernières semaines de la campagne correspond à une plus grande stabilité de la valeur de ces points de rosée. Néanmoins, comme détaillé ci-dessous, toute variation de température interne, même faible, influence notablement ce paramètre de suivi d'efficacité de séchage.

La Figure 3 représente l'évolution des points de rosée des sècheurs FDMS du LCSQA et de Madinair en fonction de la température extérieure et de son point de rosée, ainsi que la température de la station, du 14 au 18 septembre. Sur la période observée ici, le point de rosée ambiant reste relativement stable alors que les oscillations des points de rosée des deux FDMS varient de façon plus importante, avec une amplitude maximale d'environ 5°C (pour une dépression de la pompe constante). Le point de rosée de l'air échantillonné n'est donc pas le seul paramètre influant sur le point de rosée échantillon.

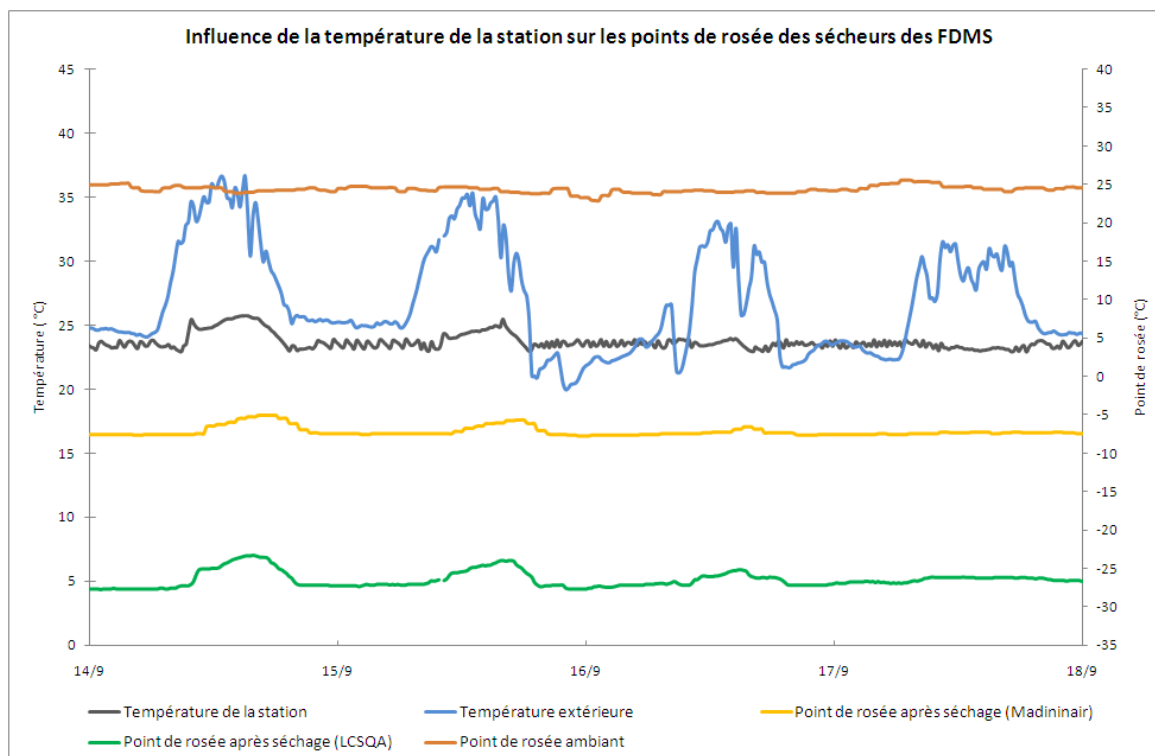


Figure 3: Influence de la température de la station sur les points de rosée des sècheurs des FDMS

4. INLUENCE DE LA DEPRESSION EN AMONT DE LA POMPE

Comme il a été dit précédemment la mise en œuvre des TEOM-FDMS par les AASQA a fait apparaître un certain nombre de questions liées à leur fonctionnement. Dans ce contexte, et pour répondre aux demandes formulées en commission de suivi « Surveillance des particules en suspension », le LCSQA a engagé des travaux visant à améliorer les procédures de réception et de maintenance, déterminer les paramètres à suivre pour vérifier le bon fonctionnement de l'outil, permettre d'identifier d'éventuels problèmes et d'y remédier.

L'efficacité de séchage est une grandeur importante puisqu'elle impacte directement la mesure de la masse, en particulier pour un aérosol humide. Une étude en laboratoire avait été réalisée en 2009 afin d'observer le comportement du sècheur à différents points de fonctionnement en faisant varier l'humidité relative de l'air échantillonné (au moyen d'un générateur d'humidité) et la dépression (à l'aide d'une vanne placée entre la pompe et le TEOM-FDMS dans le but de créer une fuite contrôlée).⁽¹⁰⁾ Les informations obtenues avaient permis de mettre en évidence l'influence de la dépression sur l'efficacité de séchage. Une bonne dépression améliore le séchage, d'autant plus pour des valeurs d'humidité importantes. Cependant, aucune série de données générée lors de cette étude n'a montré une rupture dans le comportement de la membrane Nafion®. Les valeurs critiques préconisées dans le guide n'ont pas été dépassées malgré des mises en œuvre du TEOM-FDMS à des dépressions très faibles. Par ailleurs, cette étude n'a pas complètement reflété le fonctionnement du sècheur sur le terrain dans la mesure où l'air échantillonné ne comportait pas de particules.

Afin de réaliser une étude soumettant le système à des contraintes atmosphériques fortes (température de point de rosée élevée), ainsi qu'à une quantité réelle de particules dans l'air échantillonné, il avait été indiqué dès 2009 la nécessité de poursuivre sur le terrain ces expérimentations. C'est ce qui a été fait ici, en collaboration avec Madininair. Cette AASQA a fait bénéficier le LCSQA de résultats intéressants ayant motivé d'autant plus le choix du site de l'étude. En particulier, comme le montre la Figure 4, elle avait déjà pu observer en 2008 un impact significatif de la dépression sur le point de rosée échantillon : une dépression passant de -27 inHg à -26 inHg entraîne une augmentation de la température de point de rosée d'approximativement 1°C en sortie de sècheur.

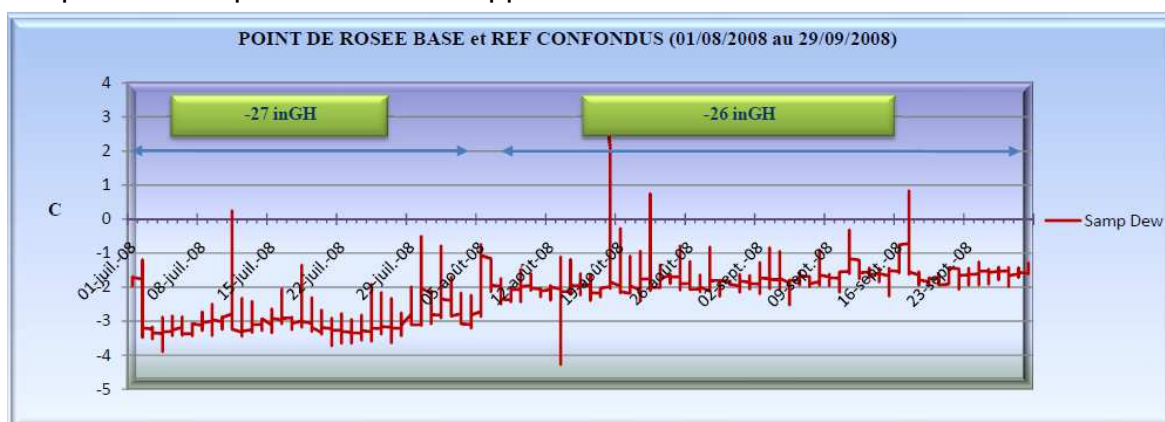


Figure 4 : Suivi temporel de du point de rosée échantillon ; constat de l'influence de la dépression (données et figure Madininair).

4.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL

De la même façon qu'en 2009, un TEOM 1400ab couplé à un module 8500 version C ont été mis en œuvre. La dépression était assurée par une pompe à piston oscillant GAST modèle 72R655V10C22X. Afin de reproduire des données sur le comportement du sécheur vis à vis de la dépression un système de fuite a été installé, comme illustré par la Figure 5.

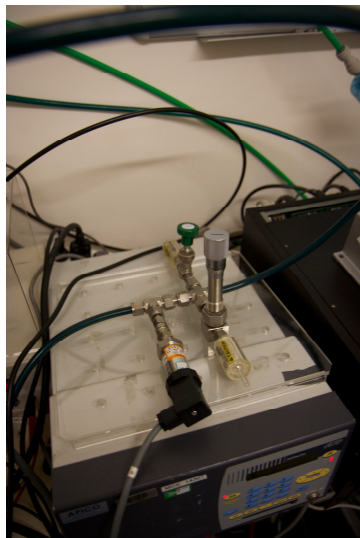


Figure 5 : Système d'acquisition et de contrôle de la dépression

4.2 PARAMETRES SUIVIS

Le nombre de paramètres enregistrables dans l'instrument étant limité, une station d'acquisition a été ajoutée en parallèle (cf. Figure 6).

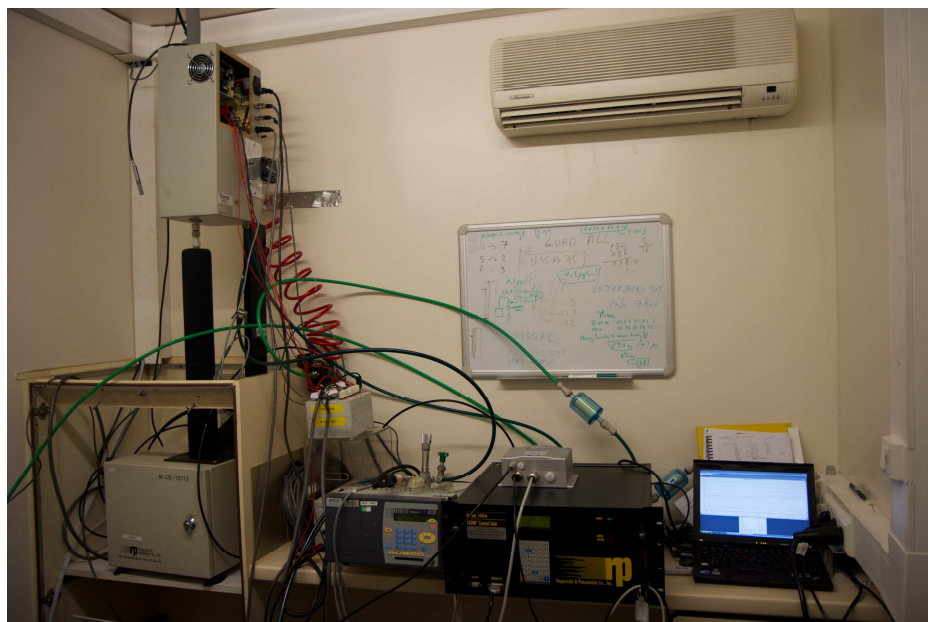


Figure 6 : Montage dans la station Bishop ; De gauche à droite : TEOM-FDMS, Bornier, Station d'acquisition, Electronique TEOM, PC

Le tableau 1 ci-dessous indique l'ensemble des paramètres suivis en détaillant le support d'acquisition utilisé :

Tableau 1 : Paramètres enregistrés

Support d'acquisition	Paramètres
TEOM-FDMS	Base Référence Bruit Charge du filtre Point de rosée ambiant Point de rosée échantillon Masse total
Station d'acquisition	Dépression Température d'entrée Température de sortie Humidité d'entrée Humidité de sortie Fréquence Point de rosée échantillon Température extérieure

Les paramètres de la station d'acquisition ont été enregistrés en connectant un bornier directement sur la carte électronique du module FDMS (cf. Figure 7 ci-dessous).



Figure 7 : Câblage sur la carte électronique du FDMS pour l'acquisition sur station

4.3 RESULTATS

Dans un premier temps, le dispositif expérimental présenté ci-dessus a permis d'évaluer le comportement d'un sécheur neuf selon la dépression dans le système. La dépression a été modifiée sur une gamme allant de -27 à -14 inHg, sur un pas de temps de 24 heures pour chaque dépression étudiée. Dans un second temps, cette même manipulation a été effectuée avec un sécheur d'âge moyen ayant fonctionné plusieurs mois.

Les résultats de ces tests sont présentés sur la figure 8, reprenant également les courbes obtenues lors de l'étude 2009 effectuée en laboratoire (courbes en pointillé). Il est important de noter que cette dernière manipulation avait été mise en œuvre dans une enceinte climatique à une température constante de 20°C. Ainsi, même si une humidité relative maximum de 80% avait été générée, la température de rosée correspondante est inférieure aux conditions rencontrées en Martinique. Au cours de l'étude de terrain, la température de point de rosée a très peu fluctué, avec un minimum de 22,6°C et un maximum de 24,4°C en moyenne journalière, permettant de négliger l'impact des conditions extérieures sur les résultats obtenus d'un jour à l'autre pour les différentes dépressions étudiées.

Sur la figure 8, les valeurs de température de point de rosée en sortie de membrane en fonction de la dépression sont représentés par les points verts et jaunes respectivement pour le sécheur neuf et pour celui d'âge moyen. Les données mesurées ont été extrapolées par régression polynomiale du second ordre. L'ordonnée à l'origine correspond à la valeur de température de point de rosée avant séchage.

En conformité avec le principe de fonctionnement de la membrane Nafion®, les résultats obtenus indiquent clairement une augmentation de la température de rosée à mesure que la dépression diminue, que le sécheur soit neuf ou plus âgé. En revanche, l'ancienneté d'une membrane impacte directement la performance de séchage. Ainsi, pour une dépression de -27 inHg, le sécheur neuf permet d'obtenir une température de rosée d'environ -16°C alors que ce paramètre n'est que de -8 °C pour le sécheur plus âgé. Cependant, cet écart se réduit au fur et à mesure que la dépression diminue. Une convergence des deux courbes est observée lorsque la dépression se situe aux alentours de -14 inHg. Ainsi, une membrane est effectivement plus efficace lorsqu'elle est neuve mais le bénéfice peut être moindre si la dépression n'est pas suffisante.

Afin de déterminer le rendement de séchage, nous avons calculé la concentration en eau en entrée et en sortie de sécheur à l'aide des équations 1 à 5 détaillées en Annexe 2. La figure 9 illustre le pourcentage d'eau extrait de l'aérosol échantillonné pour chacun des deux sécheurs étudiés. On constate la même convergence qu'observée précédemment pour une faible dépression. Par ailleurs, les courbes de rendement de séchage en fonction de la dépression connaissent une inflexion aux alentours de -18 inHg pour le sécheur neuf et -22 inHg pour le sécheur d'âge moyen, le rendement de séchage décroissant plus rapidement pour des dépressions inférieures à ces valeurs.

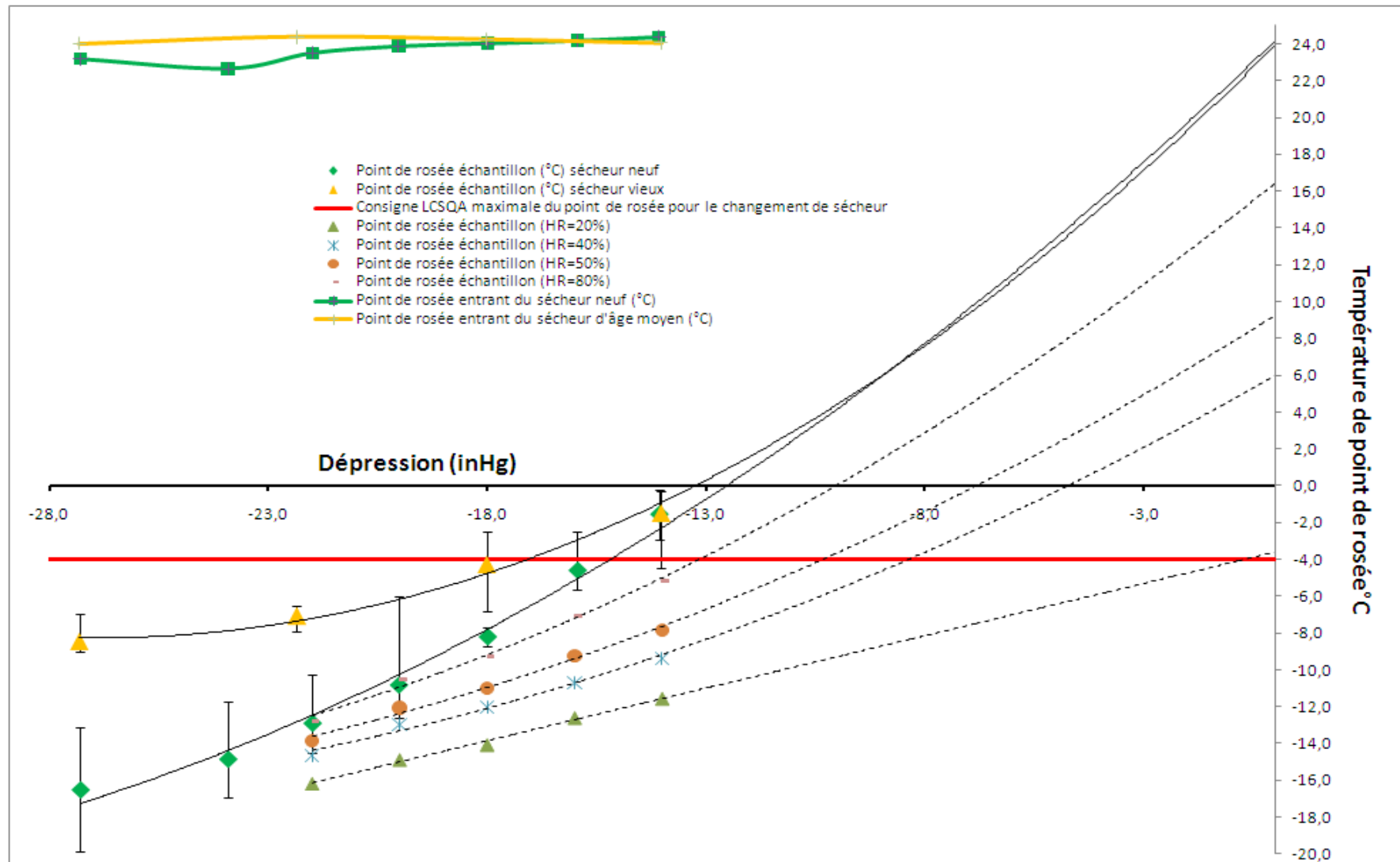


Figure 8 : Influence de dépression sur la température de point de rosée échantillon

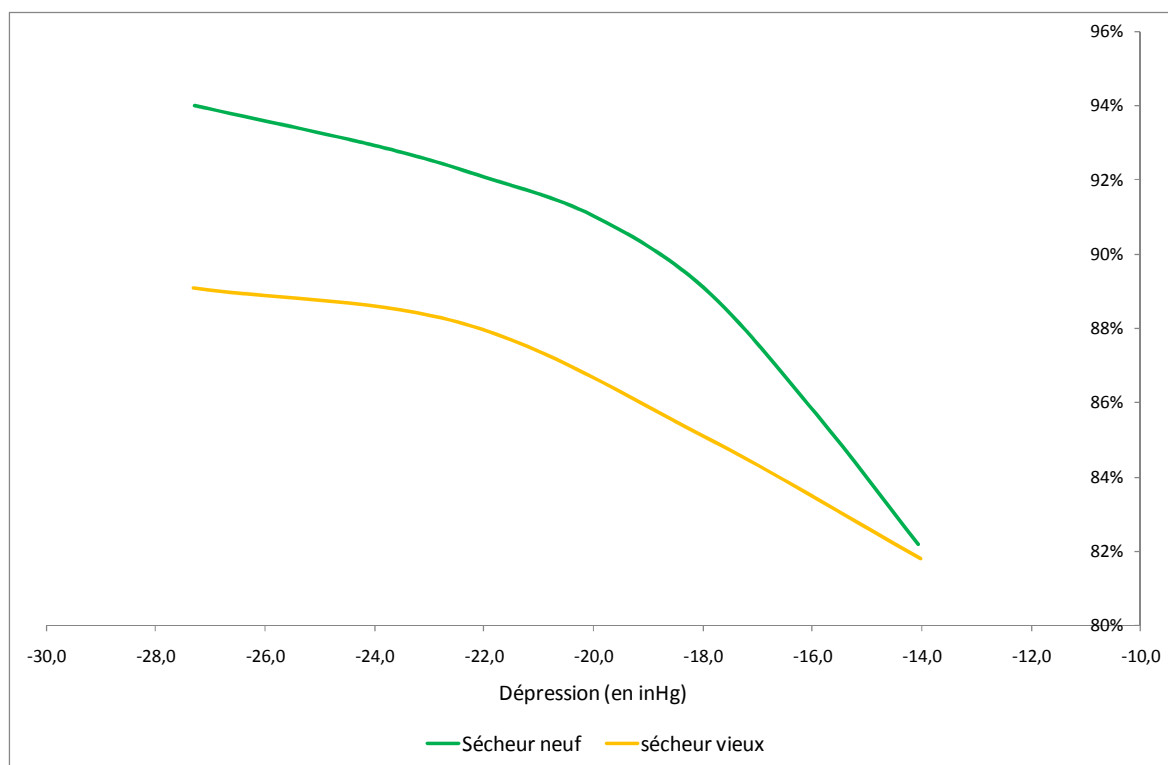


Figure 9 : Pourcentage d'eau évacué par le sécheur neuf (en vert) et par le sécheur d'âge moyen (en jaune) en fonction de la dépression.

5. COUPLAGE DE DEUX SECHEURS EN SERIE

5.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Nous présentons ici un dispositif expérimental permettant d'évaluer les bénéfices pouvant éventuellement être obtenus par le renforcement du séchage de l'air échantillonné. Pour se faire, deux sécheurs ont été installés en série sur un TEOM-FDMS et l'efficacité du séchage a été contrôlée en trois points de la ligne d'échantillonnage comme indiqué sur la figure 10. Le flux du by-pass (asséchant) est renvoyé en premier lieu dans le sécheur aval de la ligne d'échantillonnage puis dans le sécheur amont. En effet l'air échantillonné ayant déjà été en grande partie asséché par le sécheur amont, le flux du by-pass se trouvera peu chargé en eau via le sécheur aval avant d'entrer dans le sécheur amont et sera ainsi plus efficace pour assécher un air fortement chargé en humidité.

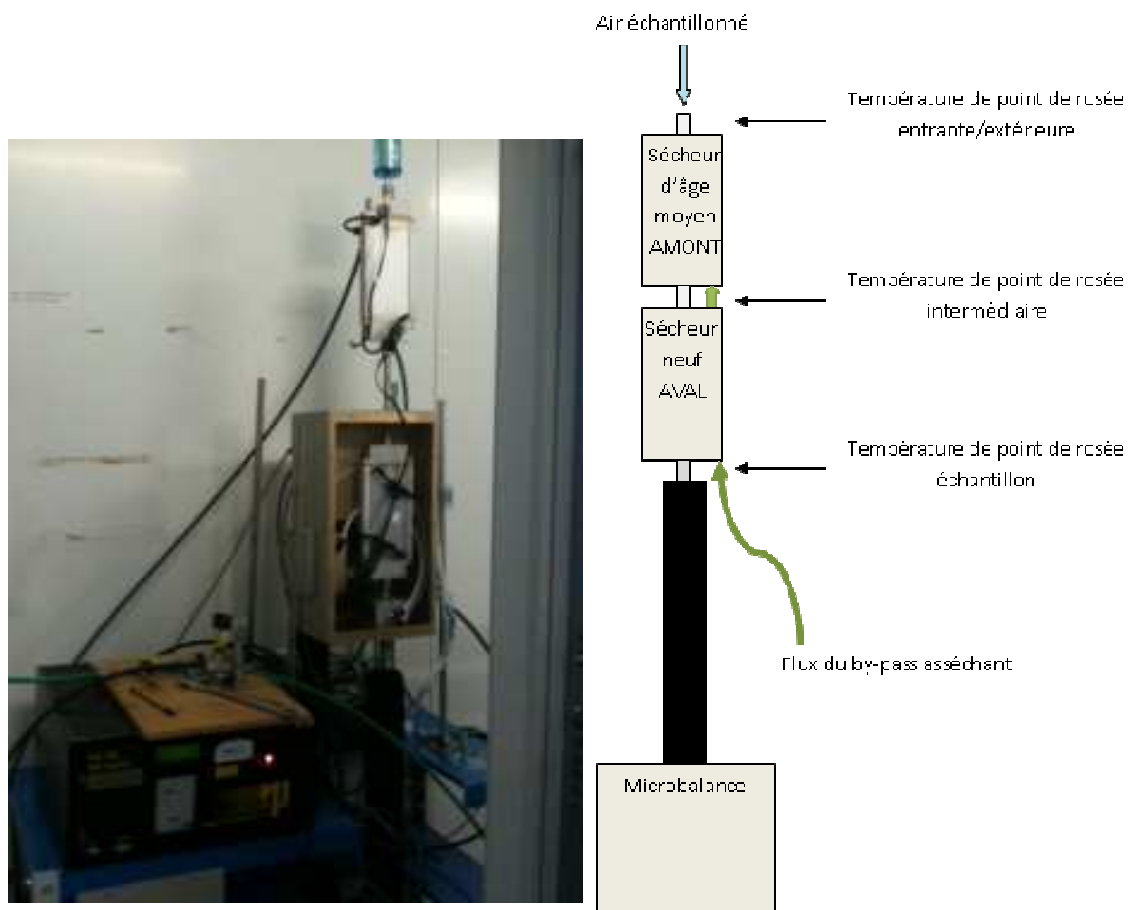


Figure 10 : Schéma de montage de deux sécheurs en série sur un TEOM-FDMS

5.2 ESSAIS PRELIMINAIRES EN LABORATOIRE

Comme illustré par la Figure 11, des tests effectués en laboratoire au début de l'année 2011 à l'INERIS ont démontré le potentiel d'un tel système à abaisser de façon conséquente la température de point de rosée échantillon et que ce montage est optimal lorsque le sécheur le plus neuf (B) est placé en aval du plus vieux (A). C'est pourquoi, le sécheur neuf a été installé le plus en aval de la ligne d'échantillonnage lors des essais sur site réalisés à la station *Bishop* de Madinair.

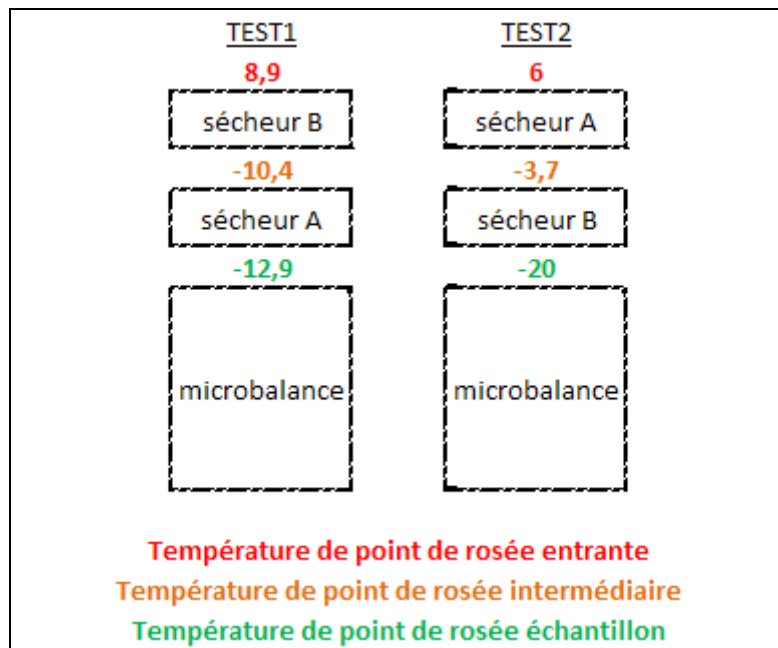


Figure 11 : Efficacité d'un montage en série de deux sécheurs sur un TEOM-FDMS pour abaisser la température de point de rosée échantillon.

5.3 RESULTATS DES ESSAIS SUR SITE

Les figures 12 à 14 présentent respectivement les concentrations d'eau, les températures de point de rosée ainsi que l'humidité relative de l'air échantillonné aux différentes étapes de la ligne d'échantillonnage lors de l'essai réalisé du 13 au 18 septembre 2011.

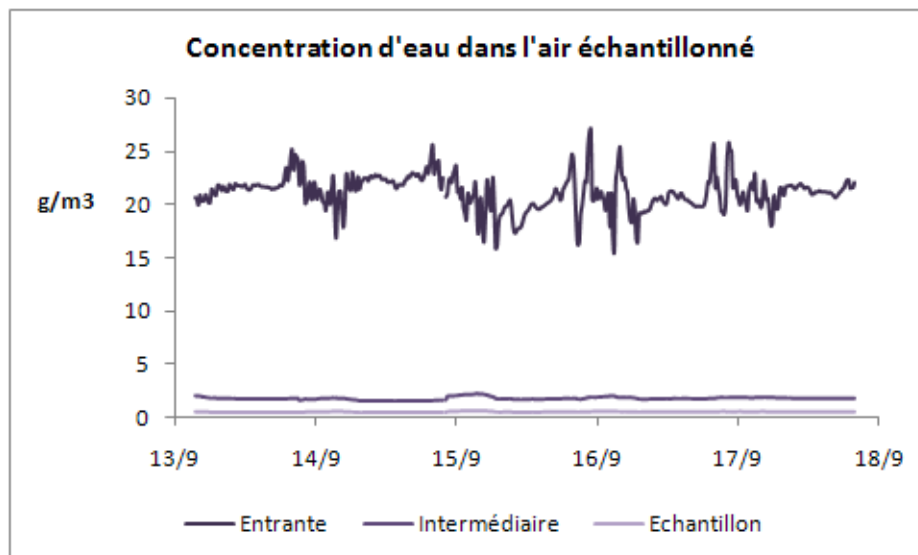


Figure 12 : Concentrations d'eau mesurées à différents niveaux de la ligne d'échantillonnage

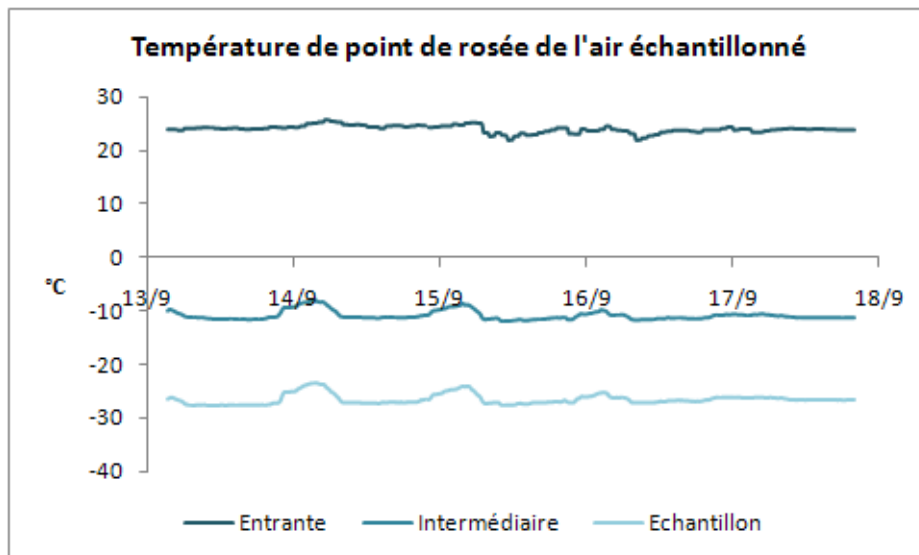


Figure 13 : Températures de point de rosée mesurées à différents niveaux de la ligne d'échantillonnage

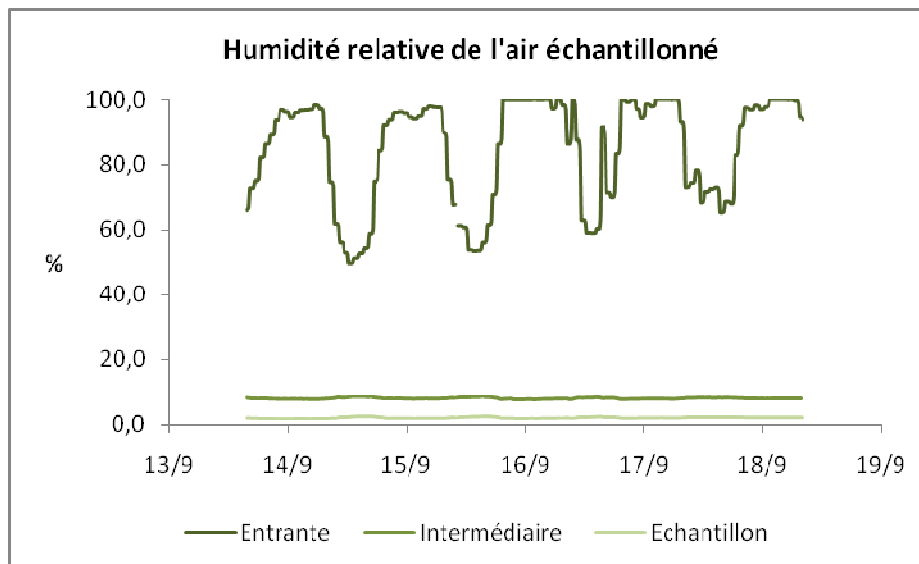


Figure 14 : Humidités relatives mesurées à différents niveaux de la ligne d'échantillonnage

Le premier étage de séchage, correspondant à un sécheur d'âge moyen, abaisse la température du point de rosée échantillon à environ -11°C en moyenne correspondant à une humidité relative de 8% et une concentration d'eau de 2 g/m^3 (pour une dépression de -27 InchHg). Ces conditions sont suffisantes pour valider les mesures effectuées par un tel système selon le guide de recommandation du LCSQA pour le suivi et l'optimisation du TEOM-FDMS⁽¹²⁾.

Malgré cela, on constate que la présence d'un deuxième sécheur abaisse considérablement le point de rosée échantillon, à $-26,6^{\circ}\text{C}$ en moyenne ($C_{\text{H}_2\text{O}}=0,5\text{ g/m}^3$, HR=2%).

Ces résultats nous indiquent qu'un sécheur considéré comme correct réduit de 91% la quantité d'eau présente dans l'aérosol échantillonné (dans les conditions extrêmes de température et d'humidité propres aux DOM-TOM). La présence d'un deuxième sécheur permet d'atteindre une efficacité d'élimination de 98% de l'eau présente dans l'air échantillonné.

L'impact de ce déficit de séchage sur la mesure de la concentration massique dans des conditions de fortes humidités (DOM-TOM) est étudié ci-après.

6. INTERCOMPARAISONS DE MESURES PM

6.1 RESULTATS DE LA CAMPAGNE INTENSIVE

Au cours de la campagne de terrain en Martinique, le TEOM-FDMS de Madinair équipé d'un sécheur d'âge moyen a pu être comparé pendant 5 jours à celui du LCSQA équipé de deux sécheurs en série (tel que décrit au chapitre précédent). Les résultats de cette intercomparaison sont illustrés par la Figure 15 ci-dessous.

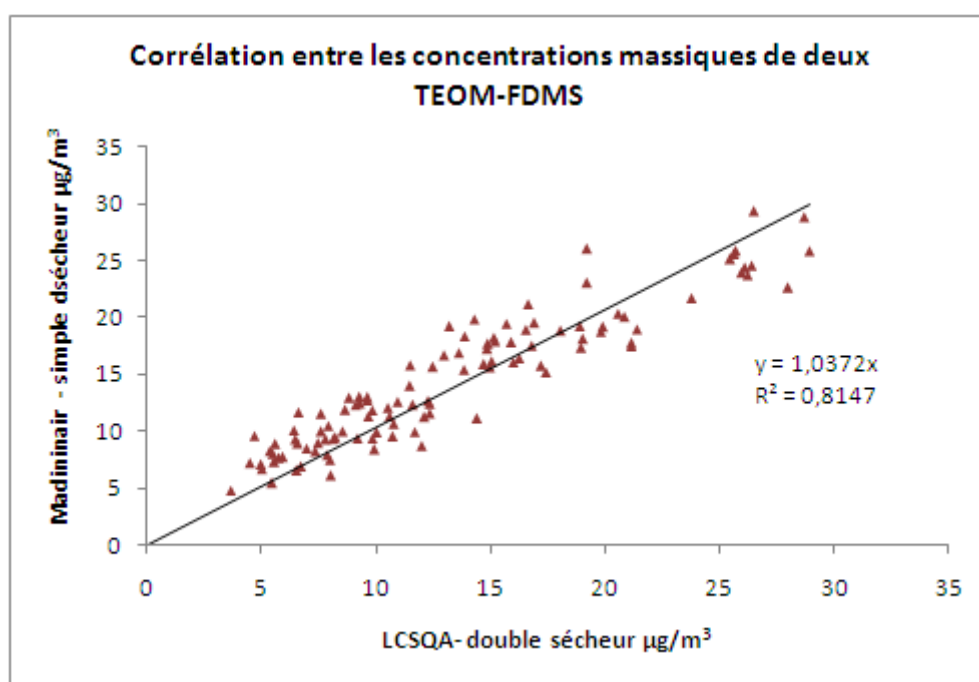


Figure 15 : Comparaison du TEOM-FDMS « Double sécheur » et du TEOM FDMS « simple sécheur » (moyennes horaires)

La dispersion observable sur la Figure 15 ($R^2 = 0,81$) peut partiellement être attribuée à la désynchronisation des instruments. On note cependant une tendance à la surestimation, de l'ordre de 3%, du TEOM-FDMS équipé d'un seul sécheur (d'âge moyen). Un test de Student indépendant sur les moyennes confirme que la moyenne des mesures du TEOM-FDMS équipé de sécheur en série est significativement inférieure à celle du TEOM-FDMS simple sécheur (p-value de 0,1092).

Précisons que la bonne correspondance des mesures réalisées par les deux instruments placés dans des conditions de fonctionnement identiques (chacun équipé d'un seul sécheur d'âge moyen, pour une dépression de -27 inHg et des températures de points de rosée identiques) a pu être vérifiée sur une courte période (environ 24h) entre le 18 et 19 septembre. En effet, la corrélation entre les séries de mesures obtenues dans ces conditions de fonctionnement identiques présente une pente de 0,999. De plus, le test de Student indépendant appliqué à ce jeu de données confirme que la moyenne des mesures des deux TEOM-FDMS n'est pas significativement différente dans ce cas (p-value de 0,7552).

La légère surestimation observée dans le cas d'un TEOM-FDMS placé dans des conditions normales d'utilisation par rapport à un TEOM-FDMS équipé de deux sécheurs peut être expliquée par un résidu d'eau plus important, comme décrit au chapitre 5.

Ce phénomène peut être à l'origine d'un blanc d'instrument relativement important (e.g., environ $3,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, équitablement répartis entre les voies « ref » et « base », lors d'un test effectué par Madinair quelques mois après la campagne), ainsi qu'à la présence d'une ordonnée à l'origine significativement différente de 0 lors d'exercices d'intercomparaison à la mesure gravimétrique, comme celui réalisé au cours de l'étude sur la station *Bishop* (cf. Figure 16).

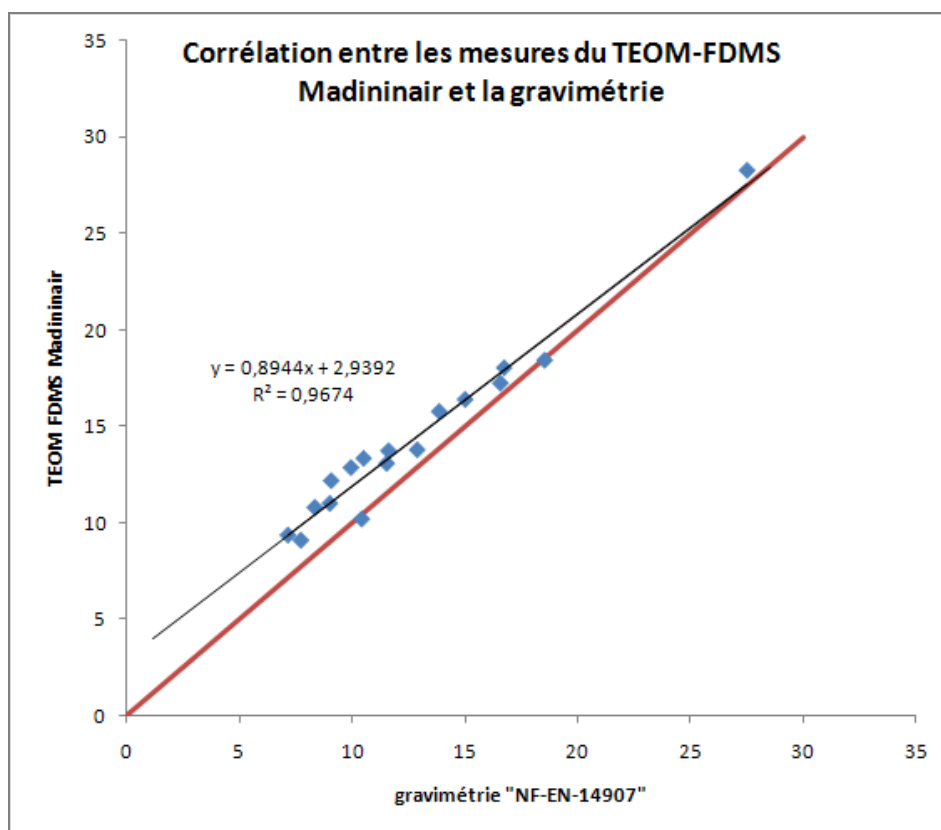


Figure 16 : intercomparaison entre les mesures journalières $\text{PM}_{2.5}$ obtenues par le TEOM-FDMS de Madinair (placé dans des conditions d'utilisation conformes à celles préconisées par le guide LCSQA) et celles obtenues par pesée (selon la norme NF EN 14907) des filtres prélevés à l'aide d'un Partisol 2025 pendant et quelques jours après la campagne.

Etant donné les nombreuses configurations testées sur le TEOM-FDMS du LCSQA au cours de la campagne de terrain, il n'est pas possible de réaliser le même type d'intercomparaison à la méthode de référence avec ce dernier. En revanche, un exercice de comparaison sur le long terme entre le TEOM-FDMS de Madinair et celui du LCSQA équipé d'un sécheur neuf, a été initié suite à cette étude. Comme détaillé ci-après, la légère surestimation de la concentration massique semble s'accroître à mesure de la dégradation des propriétés intrinsèques de séchage de la membrane Nafion®.

6.2 COMPARAISON SUR LE LONG TERME

A compter du 22 septembre 2011, le TEOM-FDMS du LCSQA a été muni d'un sécheur neuf et le TEOM-FDMS de Madinair a été maintenu en l'état, fonctionnant avec une température de point de rosée échantillon d'environ -7°C . Une première analyse des paramètres de fonctionnement ainsi que des mesures de masse enregistrés entre fin septembre 2011 et début janvier 2012 est proposée ici.

La figure 17 présente l'évolution des températures de point de rosée échantillon de chacun des deux instruments. Ce paramètre se détériore plus rapidement dans le cas du TEOM-FDMS équipé d'un sécheur neuf. Ceci démontre l'absence de linéarité dans la détérioration des sécheurs et confirme donc la difficulté à prévoir leur fin de vie. Par ailleurs, cette détérioration plus rapide en début de vie limite la période d'efficacité optimale du sécheur à une faible période compte tenu de sa durée de vie totale. L'impact sur une surestimation possible de la masse de particule mesurée n'est donc probablement pas linéaire et ainsi difficilement corrigable par un simple facteur correctif.

La figure 18 présente la différence des concentrations mesurées par les deux TEOM-FDMS pendant les 4 premiers mois de cet exercice d'intercomparaison. Un test de Student indépendant indique que la moyenne des mesures du TEOM-FDMS équipé d'un sécheur neuf est significativement inférieure à la moyenne du TEOM-FDMS équipé du sécheur d'âge moyen (Figure 19).

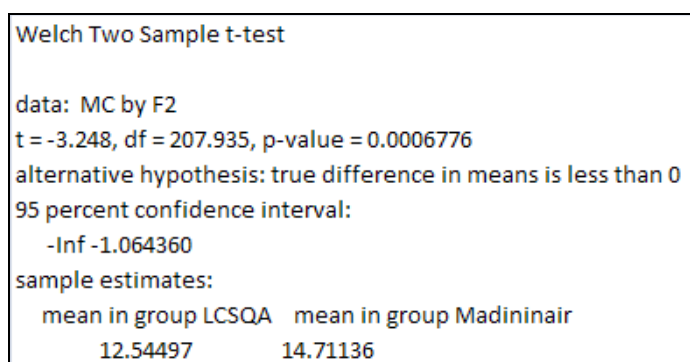


Figure 19 : Résultat du test de student indépendant entre les mesures journalières $PM_{2.5}$ réalisées par le TEOM-FDMS de Madinair équipé d'un sécheur d'âge moyen et celui du LCSQA équipé d'un sécheur au cours du dernier trimestre 2011.

En outre, malgré un vieillissement naturel du sécheur neuf, qui s'éloigne donc lui-même des conditions optimales d'utilisation l'écart entre les deux TEOM-FDMS tend à s'accroître avec le temps. Ceci indique que la surestimation des PM mesurées est fonction de l'âge des sécheurs.

Il est également à noter que la différence de masse observée entre les deux TEOM-FDMS est équitablement répartie entre les voies « réf » et « base » (cf. Figure 20), confirmant l'hypothèse d'un rôle prédominant joué par l'eau sur cet écart. En effet, l'humidité résiduelle présente de façon plus importante sur les particules ayant traversé le sécheur d'âge moyen est comptabilisée deux fois : la première lorsqu'elle est retenue par le filtre de collection du TEOM (en mode « base »), la deuxième lorsqu'elle s'évapore en mode « réf ».

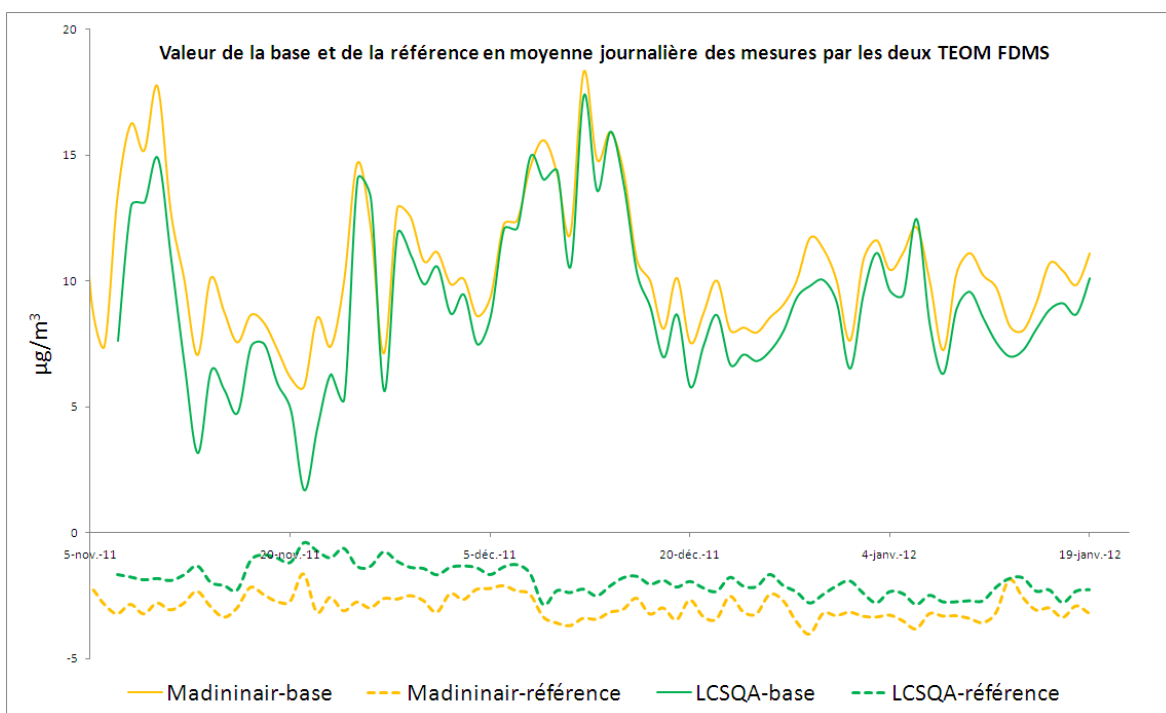


Figure 20 : Suivi temporel des valeurs de concentrations journalières en voies « base » et « réf » du TEOM-FDMS de Madinair équipé d'un sécheur d'âge moyen et de celui du LCSQA équipé d'un sécheur neuf au 4 sept. 2011.

En partenariat avec Madinair, il a été décidé de maintenir le TEOM-FDMS LCSQA sur la station *Bishop* au cours de l'année 2012 (en remplaçant avant l'été le sécheur actuellement en fonctionnement par un sécheur neuf), afin de poursuivre cet exercice d'intercomparaison et de soumettre la linéarité observée pour la différence entre les deux instruments à une dégradation prononcée de l'efficacité intrinsèque du sécheur du TEOM-FDMS de Madinair.

7. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

D'une manière générale, les résultats obtenus lors de la présente étude réalisée en collaboration avec Madinair confirment et renforcent les recommandations préconisées par le guide LCSQA⁽¹²⁾. En particulier :

- Les oscillations des températures de point de rosée échantillon sont corrélées aux oscillations constatées sur la température de la station (pour des températures de point de rosée ambiant stables). La température de fonctionnement des sécheurs FDMS a donc un impact direct sur l'efficacité de ces derniers et doit être surveillée/contrôlée attentivement, afin d'éviter un éventuel risque de surestimation de la concentration massique.

- L'utilisation de TEOM-FDMS présentant une dépression en amont de la pompe inférieure à -20 inHg peut conduire à une baisse rapide du rendement des sècheurs. Sur ce point, il est également à noter que différents retours d'expérience ont montré que le manomètre d'origine pouvait fortement dériver et, par ailleurs, présenter des fuites. Il est donc fortement conseillé de maintenir une dépression plus importante que -20 inHg, et de procéder à une vérification régulière du manomètre d'origine, voire de remplacer ce dernier (permettant en outre la mise en place d'un suivi de la dépression en routine, informations disponibles sur demande auprès du LCSQA).
- L'utilisation d'un TEOM-FDMS présentant une température de point de rosée échantillon autour de -5°C peut conduire à une légère surestimation de la concentration massique de PM (de l'ordre de 3 µg/m³ dans le cas présent d'un environnement très humide). Il semble donc opportun de maintenir un seuil limite d'intervention de -4°C pour ce paramètre.

Au cours de la présente étude, un dispositif expérimental permettant d'évaluer les bénéfices pouvant éventuellement être obtenus par le renforcement du séchage de l'air échantillonné à l'aide de deux sècheurs en série a été développé. Les résultats obtenus indiquent une légère influence de ce « double-séchage » sur la concentration massique mesurée par un TEOM-FDMS respectant les critères préconisés par le guide LCSQA, n'impliquant pas la nécessité de la mise en œuvre de ce dispositif en routine.

D'une manière plus spécifique à l'utilisation des TEOM-FDMS dans les DOM, les conditions climatiques imposent de porter une attention encore plus importante à ces recommandations qu'en métropole, comme il a déjà été souligné par Madinair lors de plusieurs réunions de la Commission de Suivi « particules » du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Par ailleurs, les faibles teneurs en composés semi-volatiles présents en phase particulaire (du fait des températures ambiantes élevées) y limitent les bénéfices métrologiques apportés par l'ajout du module FDMS au TEOM 1400ab.

Il est également à noter que la présente étude a été réalisée à l'aide de sècheurs de nouvelles générations (ré-)assemblés aux Pays-Bas par *Thermo Europe* et distribués en France depuis 2010 (cf. Annexe 3). Les retours d'expérience réalisés sur ce type de sécheur indiquent une efficacité de séchage bien plus importante, permettant d'espérer un allongement de leur durée de vie. En revanche, il serait intéressant d'évaluer l'impact du séchage sur la prise en compte des espèces semi-volatiles pour la mesure des concentrations massiques des PM. En effet, un phénomène de « surséchage » pourrait entraîner un risque de sous-estimation des espèces semi-volatiles par déliquescence de ce type d'aérosols. Des travaux expérimentaux du LCSQA/INERIS sont prévus sur cette thématique en 2012.

Enfin, comme proposé depuis 2011, l'examen de bases de données exhaustives des paramètres de fonctionnement des TEOM-FDMS permettra d'affiner l'élaboration du protocole de contrôle qualité de sécheurs en routine. En particulier, les premiers résultats obtenus en collaboration avec Qualit'Air Corse mettent en avant l'intérêt du suivi en continu de l'humidité relative en sortie de sécheur. En effet comme illustré par la Figure 21, une rupture franche dans la courbe de suivi de ce paramètre (observée moins nettement par le suivi de la température de point de rosée échantillon) a pu être observée après un évènement ponctuel (un orage) ayant partiellement dégradé la qualité de séchage. La surveillance de l'humidité relative en sortie de sécheur pourrait ainsi permettre d'identifier rapidement un dysfonctionnement du sécheur.

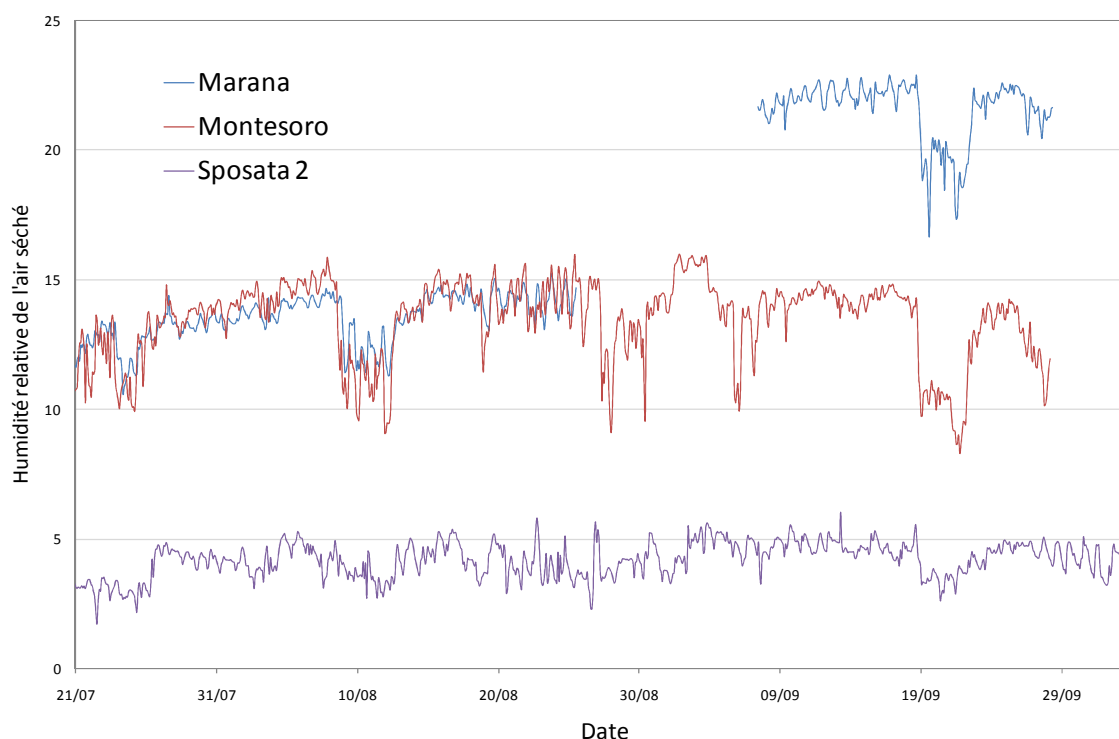


Figure 21 : Suivi temporel de l'humidité relative en sortie de sécheur sur trois sites de Qualit'air Corse. (Sposata : sécheur de nouvelle génération, La Marana et Montesoro : sécheurs d'ancienne génération).

8. REFERENCES

- (1) Allen G., Sioutas C., Koutrakis P., Reiss R., Lurmann F.W. et Roberts P.T.: Evaluation of the TEOM method for measurement of ambient particulate mass in urban areas, J. Air Waste Manag. Assoc., 47, 682-687, 1997
- (2) LCSQA et AIRPARIF (Blanchard O., Marfaing H.): Etude comparative entre le TEOM 1400 et différents préleveurs manuels sur filtre, Rapport INERIS, 2001
<http://www.lcsqa.org/thematique/traitements-numeriques/modelisation/etude-comparative-entre-le-teom-1400-et-differents-pr>
- (3) LCSQA (Le Bihan O.) : Utilisation du TEOM/FDMS pour la surveillance des PM - synthèse des travaux 2005, Rapport LCSQA, 2005
http://www.lcsqa.org/system/files/Etude5_2005-PM-SYNTHESE_rapport-v3a.pdf
- (4) Eatough D.J., Long R.W., Modey W.K., Eatough N.L.: Semi-volatile secondary organic aerosol in urban atmospheres: meeting a measurement challenge, Atmos. Environ., 37, 1277-1292, 2003
- (5) Favez O., Cachier H., Sciare J. et Le Moullec Y. : Characterization and contribution to PM_{2.5} of semi-volatile aerosols in Paris (France), Atmos. Environ., 41, 7969-7976, 2007
- (6) LCSQA et AIRPARIF (Le Bihan O. et Marfaing H.): procédure d'équivalence : TEOM/FDMS PM₁₀ et PM_{2.5} - campagne de Bobigny, Rapport LCSQA, 2005
http://www.lcsqa.org/system/files/Etude5_2005-PM-BOBIGNY-rapport-v3a.pdf
- (7) LCSQA (Le Bihan O.) et ATMOPACA : procédure d'équivalence : TEOM/FDMS PM₁₀ et PM_{2.5} - campagne de Marseille, Rapport LCSQA, 2006
http://www.lcsqa.org/system/files/TEOM_FDMS_PM10_PM2.5_Campagne_Marseille_vf.pdf
- (8) Wilson W.E., Grover B.D., Long R.W., Eatough N.L. et Eatough D.J. : The measurement of fine particulate semivolatile material in urban aerosols, J. Air Waste Manag. Assoc., 56, 207-215, 2006
- (9) LCSQA (Mathe F. et Herbin B.): démonstration de l'équivalence de la jauge radiométrique MP101M-RST d'Environnement SA, rapport LCSQA, 2006
<http://www.lcsqa.org/system/files/RequivaPM102006+v2.pdf>
- (10) LCSQA (Ustache A., Favez O.) : Suivi et optimisation de l'utilisation du TEOM-FDMS, partie 2/2 : accompagnement à la mise en œuvre des modules FDMS, rapport LCSQA, 2009
<http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/suivi-et-optimisation-de-utilisation-des-teom-fdms-2-2-accompagnement-la-mise->
- (11) AIRAQ (Bunales R.) : test d'un appareil mesurant simultanément les PM_{2.5} et les PM₁₀ sur le site de Biarritz (64), rapport de 2008 (n°ET/MM/08/08)
- (12) LCSQA (Favez O., Ustache A.) : Suivi et optimisation de l'utilisation du TEOM-FDMS : guide pour l'utilisation du TEOM-FDMS, guide LCSQA, 2010
<http://www.lcsqa.org/rapport/2010/ineris/suivi-optimisation-utilisation-teom-fdms-guide-utilisation-teom-fdms-version-201>

(13) LCSQA (Favez O.): Suivi et optimisation de l'utilisation des TEOM-FDMS : suivi de la conformité aux méthodes de référence NF EN 12341 et NF EN 14907, Rapport LCSQA, 2010

<http://www.lcsqa.org/rapport/2010/ineris/suivi-optimisation-utilisation-teom-fdms-suivi-conformite-aux-methodes-reference>

(14) Lowe, P.R., Ficke J.M.: The computation of saturation vapor pressure, Tech. Paper No. 4-74, Environmental Prediction Research Facility, Naval Postgraduate School, Monterey, CA, 1974

9. LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation	Nombre de pages
Annexe 1	Fiche descriptive de l'étude	4
Annexe 2	Calcul de la concentration en eau	2
Annexe 3	Compte-rendu de la réunion avec Thermo Europe du 30 septembre. 2011	4

ANNEXE 1

Fiche descriptive de l'étude LCSQA 2011 correspondant au présent rapport

ETUDE : SUIVI ET OPTIMISATION DE L'UTILISATION DES TEOM-FDMS

Responsable de l'étude : INERIS
En collaboration avec l' EMD (point 3)

Objectif

L'objectif de cette étude est de poursuivre l'accompagnement de la mise en œuvre des TEOM-FDMS au sein du dispositif français de surveillance de la qualité de l'air via les actions suivantes :

- le suivi du fonctionnement des TEOM-FDMS sur le terrain
- le suivi de l'évolution de l'appareil, des travaux européens et des exercices de démonstration d'équivalence
- la mise en place d'une vérification continue de l'équivalence sur deux sites du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air
- la réalisation d'études sur les performances du sécheur du module FDMS

Contexte et travaux antérieurs

Afin de répondre à l'exigence européenne de fournir des données de PM équivalentes aux normes en vigueur, la France a décidé d'opter pour une solution instrumentale (mesures par TEOM-FDMS et Jauge Bêta MP101-RST). Une démonstration d'équivalence de ces deux appareils avec la norme EN12341 (PM_{10}), et du TEOM-FDMS seul avec la norme EN14907 ($PM_{2.5}$) a été réalisée, et un dossier d'équivalence déposé auprès de la Commission Européenne.

Depuis le 1^{er} janvier 2007, les TEOM-FDMS sont donc très largement utilisés en routine sur l'ensemble du territoire pour la surveillance des PM_{10} et des $PM_{2.5}$, en vue du respect de la directive européenne sur la qualité de l'air. Le LCSQA/INERIS s'est alors attaché à suivre le fonctionnement des instruments sur le terrain et à apporter un appui technique à l'utilisation des modules FDMS, en réalisant notamment plusieurs retours d'expériences ayant permis la rédaction d'un guide d'utilisation des TEOM-FDMS, dont une nouvelle version a été mise à jour en 2010. En parallèle, des exercices d'intercomparaisons sur sites ont été réalisés en 2008 (campagne QAP du JRC) et 2010 (campagnes à Paris et Creil), permettant de confirmer le bon comportement de ces instruments par rapports aux normes EN12341 et EN14907.

Par ailleurs, ces deux dernières années ont vu l'apparition sur le marché de nouvelles versions de TEOM-FDMS : le 1405f et le 1405df. Le premier repose sur le même principe de mesure que la version précédente, alors que le second est équipé d'un impacteur virtuel, placé entre la tête de prélèvement et les sécheurs, permettant la mesure simultanée des PM_{10} et des $PM_{2.5}$. La mise en œuvre de ces nouvelles versions s'est révélée problématique du fait de défauts de conception initiaux. Le constructeur propose aujourd'hui des versions reconfigurées permettant la résolution des problèmes techniques identifiés. Ces nouvelles versions font actuellement partie intégrante d'un exercice de démonstration d'équivalence de différents analyseurs de PM réalisé conjointement par le TÜV et le MCERTS (organismes de certification allemand et anglais). Une étude réalisée par le LCSQA/INERIS en 2010 a également conclu à un comportement satisfaisant des 1405f et 1405df par rapport aux normes EN12341 et EN14907 au cours d'une campagne d'intercomparaison réalisée à Creil.

Enfin, il est à noter que la Commission Européenne recommande aux Etats Membres disposant d'une méthode équivalente de vérifier ce statut, afin de s'assurer de la qualité des données rapportées au niveau européen. Dans ce contexte, le projet de norme sur les mesures automatiques de PM, actuellement étudié au sein du GT 15 du CEN TC 264, prévoit, en l'état, un suivi continu de l'équivalence à la méthode de référence pour les différents types d'analyseurs utilisés pour la mesure de PM.

Travaux proposés pour 2011

1. Suivi du fonctionnement des TEOM-FDMS

L'équipe du LCSQA/INERIS s'attachera, comme c'est le cas depuis 2006, à suivre le bon fonctionnement des TEOM-FDMS sur le terrain. Ce suivi sera effectué par retours d'expérience, directement auprès des AASQA le souhaitant et lors des réunions de la Commission de Suivi "Surveillance des particules en suspension". Une attention particulière sera portée sur la validité des critères et recommandations d'assurance qualité préconisés dans la dernière version du guide pour l'utilisation des TEOM-FDMS. Ces échanges pourront donner lieu à la rédaction d'une nouvelle version du guide, si cela s'avère nécessaire.

2. Suivi de l'évolution de l'appareil, des travaux européens, et des exercices de démonstration d'équivalence

Les contacts établis depuis plusieurs années avec les représentants européens du constructeur, avec le revendeur français, ainsi qu'avec les représentants des pays européens participant au GT 15 du CEN et à AQUILA seront poursuivis afin de maintenir une veille scientifique et technique sur l'évolution des nouvelles versions de TEOM-FDMS et sur les conclusions des exercices de démonstration d'équivalence et d'intercomparaisons sur sites réalisés en Europe. Un compte-rendu de ce travail de veille sera effectué à l'occasion des réunions de la Commission de Suivi "Surveillance des particules en suspension".

L'implication du LCSQA au sein d'AQUILA et du GT 15 du CEN permettra également de valoriser l'expertise française en matière d'assurance qualité des données PM obtenues par TEOM-FDMS au niveau européen.

Enfin, un échange d'informations sera réalisé au niveau Européen dans le cadre du projet AirMon Tech (FP7) visant à dresser un état des lieux des techniques disponibles sur le marché ou en devenir pour l'étude des polluants atmosphériques réglementés dans le cadre de la directive 2008/50/CE.

3. Mise en place du dispositif de vérification permanente de l'équivalence de la mesure automatique des PM

Afin de conforter le choix français de l'utilisation de méthodes automatiques répondant aux exigences européennes en matière de mesures réglementaires de PM, il est proposé de mettre en place un processus pérenne de vérification de l'équivalence à la méthode de référence des analyseurs utilisés au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air.

En 2011, ce processus pourra correspondre à **la réalisation de mesures gravimétriques de PM₁₀ selon la norme EN12341 sur deux ou trois sites d'AASQA disposant, pour la mesure réglementaire, soit d'un TEOM-FDMS, soit d'une jauge bêta MP101M-RST (cf. fiche 3/2 « mesure des particules en suspension par absorption de rayonnement bêta »).**

Afin d'assurer, dans un premier temps, la proximité des sites de prélèvement et des infrastructures nécessaires à la réalisation des pesées, il est proposé, en collaboration avec les AASQA concernées, de réaliser cette étude sur les sites de Frémainville (site rural, Ile de France, mesure réglementaire par TEOM-FDMS) et de Metz-Borny (site urbain, Lorraine, mesure réglementaire par MP101M-RST). Ces sites pourront être équipés respectivement d'une jauge bêta (MP101M-RST mis à disposition par le LCSQA/EMD et/ou jauge bêta d'un autre type mis à disposition par Airparif) et d'un TEOM-FDMS 1405f (mis à disposition par le LCSQA/INERIS). La réalisation de mesure sur le site de Port-Saint-Louis (site industriel, PACA, mesure réglementaire par TEOM-FDMS à partir de 2011) est également envisagée.

Ces mesures seront menées en commun entre les AASQA et le LCSQA :

- LCSQA : pilotage, installation des matériels de prélèvement complémentaires sur les stations, pesées, récupération et exploitation des données.
- AASQA : suivi en continu des stations, récupération des filtres et leur transmission à l'organisme chargé des pesées, exploitation des données en partenariat avec le LCSQA.

Cette étude se déroulera sur une année complète, et a vocation à être reconduite de façon pérenne en alternance sur quelques sites français représentatifs de la diversité des conditions climatiques et typologiques.

4. Evaluation des performances du sécheur utilisé dans le module FDMS

Les études réalisées ces dernières années sur l'utilisation du TEOM-FDMS ont permis de mettre en évidence l'importance de trois facteurs clés dans la réalisation de mesures de qualité :

- la minimisation des variations de température dans l'environnement immédiat de l'instrument et le maintien d'une température inférieure à 27°C dans la station de mesure,
- le maintien d'une bonne dépression en amont de la pompe (une dépression inférieure à -20inHg est recommandée en fonctionnement normal),
- l'efficacité du sécheur utilisé dans le module FDMS.

Ce dernier facteur s'avère aujourd'hui être le moins bien maîtrisé. Afin de s'assurer d'une bonne qualité de séchage, le guide pour l'utilisation du TEOM-FDMS préconise un suivi permanent de la différence entre les températures de points de rosée amont et aval et un seuil d'acceptabilité de -4°C pour la température du point de rosée aval. Il est proposé de vérifier la validité de ces critères en fonction de la typologie et des conditions climatiques du site de mesure.

Ainsi, il est envisagé de **réaliser, en collaboration avec plusieurs AASQA, une étude sur le long terme de l'évolution des paramètres clés du sécheur pour plusieurs instruments équipés de sécheur neufs** (ou très récents). Le panel de sites étudiés devra inclure un site dans les DOM-TOM, un site en bord de mer, un site en altitude, et deux sites de fond (rural ou urbain) faiblement impactés par les masses d'air marines, disposant de TEOM-FDMS fonctionnant dans les conditions optimum de climatisation et de dépression en amont de la pompe. Cette étude permettra également d'apporter des indications sur l'influence des embruns marins sur l'efficacité des sécheurs.

En outre, **cette étude permettra de statuer sur la durée de vie des sécheurs en fonction de ses conditions d'utilisation**. Elle pourra ainsi servir de base de réflexion dans le cadre de la mise en place, avec le constructeur et pour les AASQA le souhaitant, d'un système planifié de remplacement de sécheur à intervalle régulier.

Enfin, une étude du LCSQA/INERIS, a notamment permis de vérifier l'influence de l'humidité relative sur les performances du sécheur, mais également de mettre en évidence la nécessité de réaliser des tests sur un aérosol atmosphérique réel très humide.

Ces tests étant très délicats, voire impossibles, à réaliser en laboratoire, il pourrait être envisagé de mener est proposé de **mettre en œuvre une étude expérimentale en atmosphère réelle dans des conditions climatiques extrêmes** (Hr > 90%, et température élevée induisant une température de point de rosée élevée), consistant à :

- réaliser un exercice d'intercomparaison avec la mesure de référence
- étudier l'efficacité de séchage en plaçant une membrane desséchante additionnelle en entrée de TEOM-FDMS et de comparer les résultats obtenus aux données fournies par un instrument en fonctionnement normal
- étudier l'impact de la dépression sur l'efficacité de séchage dans ces conditions.

Cette étude serait à réaliser en collaboration avec une AASQA des DOM.

5. Travaux de synthèse

Une synthèse sera réalisée sur le contenu des travaux sur les particules PM₁₀ et PM_{2,5} réalisés par le LCSQA ces dernières années et mettant en évidence les principaux résultats obtenus et enseignements tirés.

Renseignements synthétiques 2011

Titre de l'étude	<i>Suivi et optimisation de l'utilisation des TEOM-FDMS</i>		
Personne responsable de l'étude	A. Ustache, O. Favez		
Travaux	pérennes		
Durée des travaux pluriannuels			
Collaboration AASQA	Oui		
Heures d'ingénieur	EMD : -	INERIS : 800	LNE : -
Heures de technicien	EMD : -	INERIS : 500	LNE : -
Document de sortie attendu	Rapport annuel		
Lien avec le tableau de suivi CPT	Thème 2 : Métrologie / Particules		
Lien avec un groupe de travail	Commission de suivi "particules"		
Matériel acquis pour l'étude	Consommable (filtres, boîtes de pétri, ...) + membranes desséchantes + petit matériel		

ANNEXE 2

Calcul de la concentration en eau

$$C_{H_2O} = X_{H_2O} \cdot n_{air} \cdot M_{H_2O}$$

Équation 1 : Concentration d'eau dans l'air

$$X_{H_2O} = \frac{P_{H_2O}}{P}$$

Équation 2 : Rapport de mélange

$$n_{air} = \frac{P \cdot 100}{R \cdot (T + 273.15)}$$

Équation 3 : Densité de l'air

$$RH = \frac{e(T_D)}{e(T)} \cdot 100 = \frac{P_{H_2O}}{e(T)} \cdot 100$$

Équation 4 : Humidité relative

$$e = a_0 + T \cdot (a_1 + T \cdot (a_2 + T \cdot (a_3 + T \cdot (a_4 + T \cdot (a_5 + T \cdot a_6))))))$$

Équation 5 : Pression de vapeur de l'eau (Lowe, P.R. and J.M. Ficke ⁽¹⁴⁾)

Avec :

C_{H_2O} la concentration massique de l'eau en $g \cdot m^{-3}$

n_{air} la densité de l'air en $mol \cdot m^{-3}$

RH l'humidité relative en %

X_{H_2O} le rapport de mélange (ou fraction molaire) sans unité

e la pression de vapeur de l'eau en hPa

T : la température en $^{\circ}C$

T_D la température de point de rosée en $^{\circ}C$

P la pression atmosphérique en hPa

P_{H_2O} la pression partielle de l'eau en hPa

$R=8,31447215 J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$ (Constante des gaz universelle)

$M_{H_2O}=18,01534 g \cdot mol^{-1}$ (Masse molaire de l'eau)

a0	6,107799961E+00
a1	4,436518521E-01
a2	1,428945805E-02
a3	2,650648471E-04
a4	3,031240396E-06
a5	2,034080948E-08
a6	6,136820929E-11

ANNEXE 3

Compte-Rendu de la réunion avec *Thermo Europe*
du 30 septembre 2011



Ref : INERIS-DRC-11-118196-10731A

10 octobre 2011

Note du LCSQA/INERIS

Rédacteurs : Olivier Favez (LCSQA/INERIS), Bénédicte Rey du Boissieu (ATMO Rhône-Alpes), Christophe Ampe (AIRPARIF) et Olivier Noteuil (MADININAIR)

Objet : **compte-rendu de la réunion *Thermo Scientific Europe - Ecomesure - AASQA - LCSQA* s'étant tenu le 30 septembre 2011 à Breda (Pays-Bas)**

Présents :

- Gert-Jan Bakkenes (Directeur commercial Europe *Thermo Scientific Europe*)
- Enk Oele (Ingénieur service scientifique *Thermo Scientific Europe*)
- Hans Maas (Directeur SAV *Thermo Scientific Europe*)
- Johan Cornelissen (Technicien SAV *Thermo Scientific Europe*)
- Claude Chambre (Directeur *Ecomesure*, distributeur français)
- Bénédicte Rey du Boissieu (ATMO Rhône-Alpes)
- Christophe Ampe (AIRPARIF)
- Olivier Noteuil (MADININAIR)
- Olivier Favez (LCSQA/INERIS)

Cette réunion a permis au dispositif national de surveillance de la qualité de l'air de faire part à la société *Thermo Scientific* des problèmes techniques et de coûts de fonctionnement engendrés par l'utilisation des TEOM-FDMS pour la mesure réglementaires des PM. Hormis les changements de membranes et joints des sècheurs des modules FDMS, il semble que *Thermo Scientific Europe* bénéficie de peu de latitudes vis-à-vis de la maison mère basée aux Etats-Unis et semble ne pas être en mesure de réellement faire évoluer les matériels de l'ensemble de la gamme Thermo. Ceci est très certainement la conséquence de la faiblesse du marché de l'air ambiant en Europe face au reste du monde, cela permet de mieux comprendre le manque de réactivité de nos revendeurs Français face aux problèmes techniques rencontrés (les demandes d'évolutions ascendantes n'étant presque jamais entendu). Ainsi, la résolution de la majorité des problèmes techniques rencontrés en France devra passer par un échange entre *Thermo Scientific Europe* et sa maison mère *Thermo Scientific Franklin*. Si Thermo s'avère être réactif vis-à-vis de nos demandes c'est que notre message concernant l'évolution possible du parc d'analyseurs Français est passé et confirmera l'importance de ce type de rencontres (LCSQA/fournisseur/Fabriquant & ASQAA). Les principaux échanges réalisés au cours de cette réunion sont résumés ci-dessous :

- Sècheurs des modules FDMS: suite à une brève présentation de la société *Thermo Scientific Europe* et de son département « qualité de l'air », la discussion est engagée sur la fiabilité et les

DRC-11-118196-10731A

coûts de maintenance des sècheurs des modules FDMS. *Thermo Scientific Europe* (Breda) a mis en œuvre une unité de changement des membranes *Nafion* de ces sècheurs depuis environ 2 ans (une visite de cette unité est effectuée en fin de matinée). Les membranes, prédécoupées, et joints d'étanchéité arrivent de l'usine principale de *Thermo Scientific* (à Franklin, MA, Etats-Unis). Après remplacement des membranes, le bon fonctionnement du sécheur est vérifié lors d'un test de fuite suivi d'un rapide contrôle du gradient de températures de rosée en amont et aval du sécheur à environ 80% d'Hr. Cette opération requiert environ 1 heure de travail. Un certificat présentant le résumé des tests passés est livré avec chaque sécheur « reconfiguré » et renvoyé aux distributeurs. Les représentants des AASQA font remarquer qu'ils n'ont pas toujours accès à ces certificats et qu'ils souhaitent que les résultats des tests contiennent les valeurs lues lors des tests et pas simplement une information comme quoi l'analyseur est dans les seuils (ex : que la dépression de la pompe lors du test soit indiquée). Il est également demandé une plus grande homogénéité des tests d'usines sur les instruments neufs réalisés à Franklin ainsi qu'une meilleure représentativité de ces tests vis-à-vis des conditions de travail habituelles. Concernant le coût de reconfiguration des sècheurs, *Thermo Scientific Europe* s'engage à formuler une proposition moins onéreuse aux réseaux français dans les 2 semaines à compter du 30/09/11, après discussion avec le distributeur français. Les ASQAA ont aussi demandées s'il était possible d'être formé sur le remplacement des membranes, qui à leurs yeux n'est pas d'une technicité poussée, la réponse à cette requête a été négative.

- Mode opératoire pour les opérations de maintenance et QA/QC : la publication et la distribution par *Thermo Scientific* d'un document de ce type sont rendues nécessaires par les problèmes rencontrés sur le terrain par les utilisateurs ainsi que par la prochaine entrée en vigueur de la norme sur les mesures automatiques de PM. Il est demandé à *Thermo Scientific* d'accélérer la rédaction du mode opératoire actuellement soumis aux experts de l'AQUILA.

- Procédure de nettoyage du « Peltier » : la procédure proposée récemment par *Thermo Scientific* vise initialement à éliminer les contaminations de polluants gazeux dans la « ligne de Référence ». *Ecomesure* propose d'étendre son champ d'application à l'élimination d'eau dans cette partie du TEOM-FDMS, problème dont *Thermo Scientific Europe* ignorait apparemment l'existence. La recommandation de *Thermo Scientific* est d'utiliser cette procédure en cas de test zéro décalé, *Ecomesure* de son côté recommande de l'appliquer systématiquement sur une base semestrielle.

- Test de zéro : *Thermo Scientific* préconise l'utilisation de la procédure reproduite notamment dans le guide LCSQA d'utilisation du TEOM-FDMS. Les résultats obtenus par *Thermo Scientific Europe* lors des campagnes de démonstration d'équivalence (cf. ci-dessous) sont satisfaisants. Ce test peut être un bon indicateur de l'efficacité du sécheur du FDMS mais peut également être liés à d'autres problèmes techniques (ex. fuites), en particulier lorsque les concentrations du signal « Base » sont significativement négatives (<-3 ?) et/ou les concentrations du signal « Ref » sont significativement positives (>3 ?).

- Fiabilité des 1405(D)F : *Thermo Scientific Europe* fournit, en version papier, la liste des mises à jour ayant dues être réalisées sur les premières versions de 1405F et DF (dont une version scannée est reproduite en Annexe du présent document). En revanche, il ne semble pas possible d'obtenir

une liste des numéros de série correspondant à ces mises à jour, une telle liste n'existant probablement pas au dire des représentants *Thermo Scientific* présents.

Les différentes modifications de conception et propositions de modification d'opérations de maintenance sont, théoriquement, disponibles directement sur le site web de *Thermo Scientific*. *Thermo* s'est engagé à fournir les codes d'accès au serveur aux ASQAA.

Concernant le rechargement du « soft », *Ecomesure* mettra à disposition de chaque AASQA demandeuse un logiciel permettant de réaliser cette opération, plutôt que d'effectuer un remplacement pur et simple de la carte « flash ». La dernière version du « soft » du 1405F est la V1.55.

Une solution permettant de résoudre les problèmes d'étanchéité des connexions de la sonde de température et humidité relative ambiantes est encore à l'étude à Franklin. Il est demandé d'envisager l'utilisation d'un câble unique, adapté à la dimension des passages de toit.

Les problèmes de fiabilité du traitement des signaux analogiques, engendrant des mesures de pression et température très bruitées, sont également toujours à l'étude.

Les ASQAA ont remontés les problèmes pour changer le filtre échantillon du 1405F, *Thermo* va réfléchir à la fabrication d'un outil spécifique (pince avec un angle adapté à l'ouverture de la microbalance).

Il est également demandé à *Thermo Scientific* de se pencher sur l'introduction d'une alarme relative aux problèmes de permutation de la vanne à translation quelque soit l'origine de ces problèmes (par ex. une panne du moteur de la vanne n'entraîne aujourd'hui pas d'émission de signal d'alarme). Cette optimisation pourrait également profiter à l'utilisation du module 8500c.

- Compatibilité des différents systèmes TEOM-FDMS :

Thermo Scientific étudie actuellement la possibilité de rendre compatible les nouvelles versions de TEOM (1405) et anciennes versions de module FDMS (8500c). Une réponse sur la faisabilité technique est attendue d'ici le premier trimestre 2012.

Thermo Scientific s'engage également à formuler une offre de prix pour l'utilisation des pièces d'un module FDMS 8500c appartenant au réseau acquéreur lors de l'achat d'un 1405F.

Enfin, il est précisé que le passage d'un 1405F en mode TEOM 50°C est possible via l'utilisation du « soft » du 1405 et le retrait du sècheur et de la vanne à translation.

- Pièces de rechange TEOM 1400AB : *Thermo Scientific Europe* confirme la constitution de stocks permettant la maintenance des 1400AB jusqu'à l'horizon 2020. *Ecomesure* a par ailleurs annoncé la constitution d'un stock de cartes électronique conséquent.

- Pompes : il est demandé à *Thermo Scientific Europe* de permettre l'achat de TEOM-FDMS sans pompe et/ou le choix par l'utilisateur d'une pompe au sein d'une liste « homologuée » par le constructeur et les utilisateurs. Une réponse sera fournie par *Thermo Scientific Europe* sur ce thème dans les prochaines semaines.

Quelques problèmes d'utilisation des analyseurs gaz sont également abordés en fin de réunion :

- temps de vie des sècheurs utilisés pour les analyseurs NO_x : estimé à 5 ans par *Thermo Scientific Europe*, mais pas de réels tests effectués.

- Performance initiale et durée de vie des « Scrubber O₃ » : pas de tests réalisés par *Thermo Scientific*, qui indique que si l'analyseur est équipé d'un sécheur sur la voie ozoneur alors il est possible de retirer le scrubber.

- Les ASQAA signalent que les analyseurs 42i présentent une plus grande instabilité que la version C. Un jeu de données sera envoyé par AIRPARIF à Thermo car ils n'ont pas observé ce phénomène.

- temps de résidence face à la nouvelle version de la norme NO_x et O₃ (<3s dans l'analyseur): *Thermo Scientific* a procédé aux calculs des temps de résidence dans les analyseurs (porte-filtre en amont exclus) et a communiqué les résultats à la société Megatec, distributeur français des analyseurs gaz *Thermo Scientific*.

- Les ASQAA signale que la qualité des pompes dernièrement livrés sont de moins bonne qualité : Thermo en a conscience mais le fabricant ne fait plus cette référence, Thermo a toute fois entamé une démarche de recherche d'un autre fournisseur.

- Peltier : Durée de vie confirmée par Thermo à 4 ans, une nouvelle version « plus fiable » de Peltier est en cours de conception.