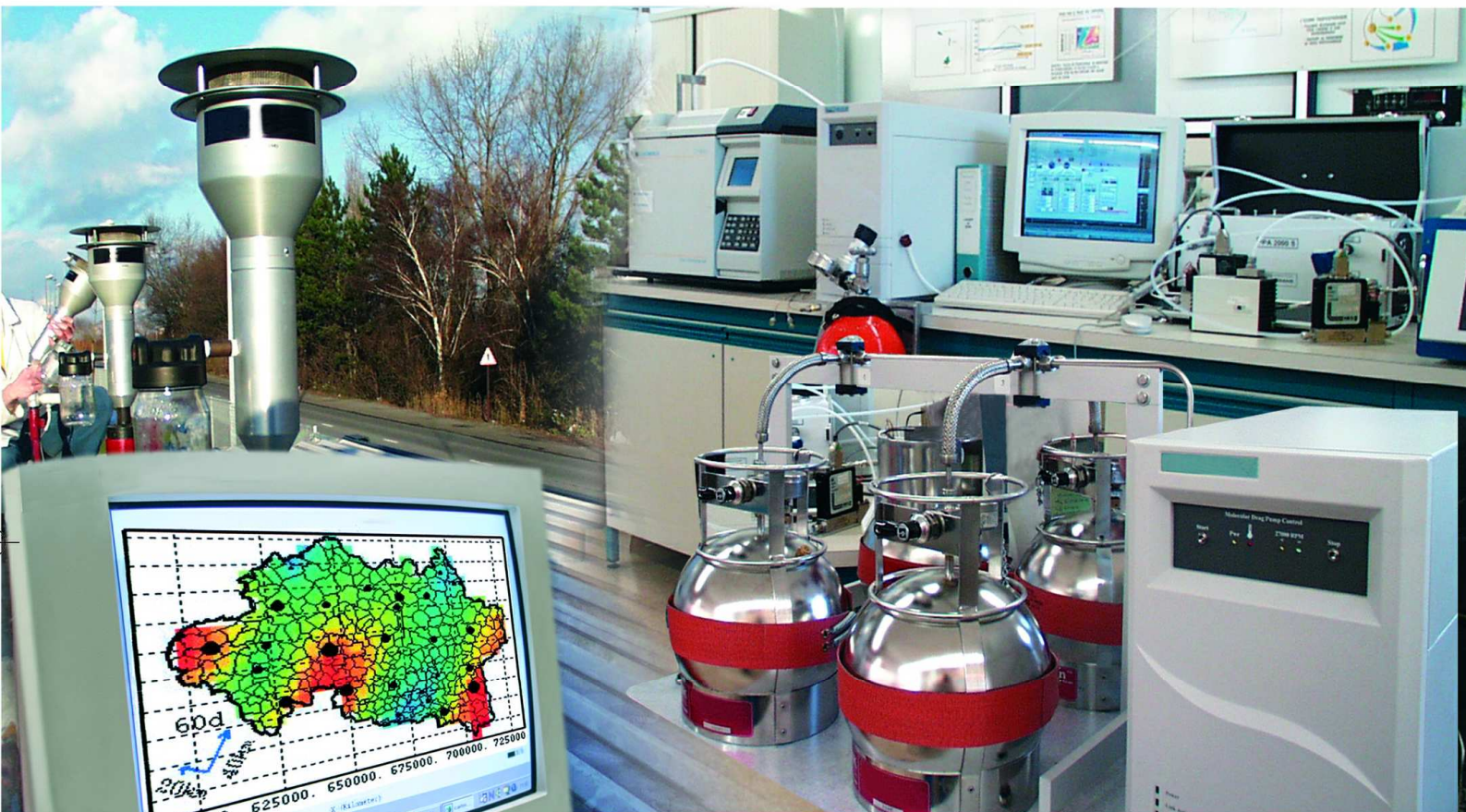




## Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



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

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

**Suivi de la conformité aux méthodes de référence NF EN 12341 et NF EN 14907 des TEOM-FDMS, anciennes (1400AB + 8500C) et nouvelles (1405F et 1405DF) versions.**

Décembre 2010

Programme 2010

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.**





# TEOM-FDMS : Suivi de la conformité aux méthodes de référence NF EN 12341 et NF EN 14907 des TEOM-FDMS, anciennes et nouvelles versions

Laboratoire Central de Surveillance  
de la Qualité de l'Air

## Métrologie des particules PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub>

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

2010

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

Ce document comporte 24 pages (hors couverture et annexes)

	Rédaction	Vérification	Approbation
<b>NOM</b>	O.FAVEZ	E. LEOZ-GARZIANDIA	M. RAMEL
<b>Qualité</b>	Ingénieur Direction de risques chroniques	Responsable unité CIME Direction de risques chroniques	Responsable LCSQA/INERIS Direction de risques chroniques
<b>Visa</b>			



## TABLE DES MATIÈRES

<b>RESUME</b> .....	<b>7</b>
<b>REMERCIEMENTS</b> .....	<b>9</b>
<b>1. INTRODUCTION</b> .....	<b>11</b>
<b>2. DESCRIPTION DES CAMPAGNES DE TERRAIN</b> .....	<b>12</b>
2.1 Campagne de Paris (LHVP, MEGAPOLI hiver) .....	13
2.2 Campagne de Creil (station « la Faïencerie » d'ATMO Picardie).....	13
2.3 Campagnes de S <sup>t</sup> Romain en Gal et Serpaize (en partenariat avec Atmo Rhône-Alpes) .....	14
<b>3. RESULTATS ET DISCUSSION</b> .....	<b>15</b>
3.1 TEOM 1400ab + FDMS 8500c.....	16
3.2 TEOM-FDMS 1405f.....	17
3.3 TEOM-FDMS 1405df.....	19
3.4 Intercomparaison multi-instruments .....	21
<b>4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES</b> .....	<b>22</b>
<b>5. REFERENCES</b> .....	<b>23</b>
<b>6. LISTE DES ANNEXES</b> .....	<b>24</b>





## RESUME

Depuis le 1<sup>er</sup> janvier 2007, les TEOM-FDMS sont très largement utilisés en routine par l'ensemble des AASQA pour la surveillance des PM<sub>10</sub> et des PM<sub>2.5</sub>. 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 QC/QA basée sur celle décrite dans les normes utilisées pour la mesure des polluants gazeux inorganiques (O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, 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 2010, le LCSQA/INERIS a également poursuivi son travail d'évaluation sur le terrain des TEOM-FDMS « ancienne génération » (modules TEOM 1400ab + FDMS 8500c), ainsi que de nouvelles versions instrumentales (1405f et 1405df), par le biais d'exercices de comparaison à la méthode de référence (mesure manuelle selon les normes NF EN 12341 pour les PM<sub>10</sub> et NF EN 14907 pour les PM<sub>2.5</sub>). Le présent rapport décrit et commente les résultats obtenus lors de ces essais d'inter-comparaison.

Les résultats obtenus tendent à confirmer l'équivalence des anciennes générations de TEOM-FDMS aux méthodes de référence, et suggèrent que les nouvelles générations (1405f et 1405df), dont les premiers modèles présentaient d'importants défauts de conception, satisfont également à ces exigences normatives.

Au regard de ces résultats, et conformément à la décision prise lors de la Commission de Suivre « particules en suspension » du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air du 31 mars 2011, le 1405f peut être considéré comme équivalent à la méthode de référence pour la détermination des PM<sub>2.5</sub> et PM<sub>10</sub>. Pour le 1405df, présentant une modification technique notable par rapport aux anciennes versions de TEOM-FDMS (i.e. ajout d'un impacteur virtuel), il est recommandé d'attendre, si possible, les résultats définitifs de la démonstration d'équivalence réalisée conjointement en Allemagne et en Angleterre.

Il convient de souligner que les exercices d'intercomparaison présentés dans le présent rapport ne sauraient constituer des campagnes de démonstration d'équivalence, notamment en raison de l'utilisation d'un seul instrument candidat (i.e. TEOM-FDMS) et du nombre relativement limité de données disponibles pour chacun d'eux.

Il est également à noter que certains de ces tests ont été réalisés en marge d'études poursuivant un autre objectif que la vérification du bon fonctionnement du TEOM-FDMS. Ainsi, il n'a pas toujours été possible d'assurer l'installation des préleveurs (utilisés pour la mesure manuelle) dans des conditions optimales. Les résultats obtenus lors de ces derniers tests indiquent un écart significatif des concentrations de PM obtenues par méthodes automatique et manuelle, en raison notamment d'une perte de matière semi-volatile lors du stockage sur site des filtres prélevés pour la mesure gravimétrique. Ces résultats confortent la position

du groupe de normalisation Européen pour la détermination des concentrations de PM dans l'air ambiant (GT 15 du CEN/TC 264) sur la nécessité de fixer une valeur limite de température de stockage des filtres sur site (vraisemblablement 23°C), dans le cadre de la révision de la norme EN 12341, à l'image de ce qu'il est déjà préconisé pour les PM<sub>2.5</sub>.

Enfin, il est à souligner que ce groupe de normalisation Européen travaille également à la rédaction d'une norme sur la mise en œuvre des analyseurs automatiques de PM. Outre l'identification de critères techniques à respecter en vue d'une approbation par type et lors d'une utilisation en routine, cette norme préconisera la vérification régulière de l'équivalence des instruments utilisés, sur des sites représentatifs de l'ensemble du dispositif de surveillance. Ainsi, des exercices d'intercomparaison, sur le même principe que ceux présentés dans le présent rapport mais couvrant des périodes plus longues, devront vraisemblablement être mis en œuvre dès la publication de la révision de la Directive 2008/50/CE (prévue pour 2013). Dans un souci d'anticipation, le LCSQA propose de pérenniser la réalisation d'exercices de vérification d'équivalence à partir de 2011, en partenariat avec des AASQA volontaires.

## **REMERCIEMENTS**

Le LCSQA/INERIS remercie le LHVP (Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris), ATMO Picardie, et Atmo Rhône-Alpes pour leur accueil lors des campagnes de terrain présentées dans ce rapport, ainsi que pour leur aide précieuse à l'installation/désinstallation du matériel. Il remercie également LIG'AIR, Air APS et la société Ecomesure pour le prêt d'instruments supplémentaires pour la réalisation de cette étude. Nos remerciements s'adressent tout particulièrement à Benoît Rocq (ATMO Picardie), Marie-Aude Kerautret, Olivier Garret et Olivier Bailloit (LHVP), Roland Sarda-Estève, Eric Larmanou et José Nicolas (LSCE), Patrice Bernard, Bénédicte Rey-Duboissieu, Sabrina Pontet et Yann Pellan (Atmo Rhône-Alpes), Claude Chambre et Serge Commegrain (Ecomesure).



## 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 celles décrites dans les normes NF EN 12341 (pour les PM<sub>10</sub>) et NF EN 14907 (pour les PM<sub>2.5</sub>).

Ces méthodes manuelles sont onéreuses, difficiles à mettre en œuvre, et ne sont pas adaptées aux besoins d'information rapide (plusieurs jours de délais 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 (PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub>) par rapport à la mesure par méthodes de référence.<sup>(1-3)</sup> 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.<sup>(2-5)</sup> 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.<sup>(2-5)</sup> 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 PM<sub>10</sub> et des PM<sub>2.5</sub>.<sup>(6, 7)</sup> 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.<sup>(8)</sup> Il est notamment pourvu d'un sécheur de type membrane Nafion.
- La jauge radiométrique MP101M-RST d'Environnement SA pour la mesure des PM<sub>10</sub>.<sup>(9)</sup>

Parallèlement à sa mission d'assistance au déploiement des TEOM-FDMS au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air, le LCSQA/INERIS s'est depuis lors attaché au suivi et à la vérification de l'équivalence de ces instruments aux normes en vigueur pour la mesure des PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub> dans l'air ambiant. C'est dans ce cadre qu'il a notamment participé à un exercice d'intercomparaison des méthodes de mesure des PM<sub>10</sub> organisée par le JRC (« Joint Research Center », organisme de recherche européen) en mars 2008 à la station de Bobigny (AIRPARIF), mettant en évidence la qualité des mesures de PM réalisées en France.<sup>(10)</sup>

En 2010, le LCSQA/INERIS a poursuivi son travail d'évaluation sur le terrain des TEOM-FDMS « ancienne version » (modules TEOM 1400ab + FDMS 8500c), ainsi que des nouvelles versions de TEOM-FDMS : 1405f et 1405df. Ce travail d'évaluation comportait notamment des exercices d'intercomparaison de mesures de PM par TEOM-FDMS (ancienne et nouvelle versions) et par méthode gravimétrique de référence, dont les résultats sont discutés dans le présent rapport.

Il convient de souligner que ces campagnes ne peuvent être considérées comme des campagnes de démonstration d'équivalence, notamment en raison de l'utilisation d'un seul instrument candidat (i.e. TEOM-FDMS) pour chaque test et du nombre relativement limité de données disponibles. Par ailleurs, certaines données présentées ici ayant été obtenues en marge d'études poursuivant un autre objectif que la vérification du bon fonctionnement du TEOM-FDMS (programme de recherche Européen MEGAPOLI à Paris, et fiche LCSQA « Méthodologie de détermination des zones géographiques concernées par les dépassements de seuils »), il n'a pas toujours été possible d'assurer l'installation des préleveurs dans les conditions optimales requises pour une campagne de démonstration d'équivalence, en particulier concernant la régulation et le contrôle de la température de travail.

## **2. DESCRIPTION DES CAMPAGNES DE TERRAIN**

Au cours de l'année 2010, le LCSQA/INERIS a été en mesure de réaliser quatre exercices distincts d'inter-comparaisons de mesures par différentes versions de TEOM-FDMS avec des mesures gravimétriques manuelles. Les conditions de réalisation de chacun de ces exercices sont synthétisées dans le tableau 1 et détaillées ci-après.

Lieu	Paris XII <sup>e</sup> ( <i>Toit du LHVP</i> )	Creil, Oise ( <i>Faïencerie</i> )	S <sup>t</sup> Romain en Gal, Rhône ( <i>moyen mobile Atmo Rhône-Alpes</i> )	Serpaize, Isère ( <i>moyen mobile LCSQA</i> )
Type de site	Fond urbain	Fond urbain	Prox. auto	Fond rural
Dates (2010)	20/01 - 23/02	04/03 - 14/04	29/09 - 18/10 17/12 - 04/01	29/09 - 18/10 17/12 - 04/01
Types de TEOM-FDMS et classes de taille étudiées	1400ab + 8500c (PM <sub>2.5</sub> )	1400ab + 8500c (PM <sub>10</sub> ) 1405f (PM <sub>10</sub> ) 1405df (PM <sub>10</sub> ) 1405f (PM <sub>2.5</sub> ) 1405df (PM <sub>2.5</sub> )	1400ab + 8500c (PM <sub>2.5</sub> ) 1405f (PM <sub>10</sub> )	1405f (PM <sub>10</sub> )

Tableau 1 : description des campagnes de terrain réalisées par le LCSQA en 2010 et mettant en jeu des mesures TEOM-FDMS et gravimétriques sur un même site.

Pour chaque inter-comparaison, les préleveurs mis en œuvre pour les mesures manuelles étaient des Partisol Plus (modèle 2025, *Thermo*), utilisés lors des exercices français de démonstration d'équivalence du TEOM-FDMS en <sup>(6-7)</sup>. Les mesures gravimétriques ont ensuite été réalisées selon les normes NF EN 12341 (PM<sub>10</sub>) et NF EN 14907 (PM<sub>2.5</sub>) au Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris (LHVP) ou à l'INERIS.

## 2.1 CAMPAGNE DE PARIS (LHVP, MEGAPOLI HIVER)

Dans le cadre de la participation de l'INERIS au programme de recherche européen MEGAPOLI, une comparaison de mesures par TEOM-FDMS par rapport à la méthode de référence a pu être réalisée en janvier-février 2010 sur le toit du LHVP (Paris XII<sup>e</sup>), correspondant à un site de fond urbain. Cet exercice d'inter-comparaison a été réalisé à l'aide d'un couple TEOM 1400ab - FDMS 8500c (ancien module 8500b reconfiguré en 8500c) du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) et principalement utilisé depuis 2002 lors de campagnes de mesures intensives en milieu urbain. Il est à noter que le local mis à disposition pour l'installation du TEOM-FDMS n'était pas climatisé.



Figure 1 : Déploiement des préleveurs et du TEOM-FDMS sur le toit du LHVP au cours de la campagne d'hiver MEGAPOLI (janv.-fév. 2010).

## 2.2 CAMPAGNE DE CREIL (STATION « LA FAÏENCERIE » D'ATMO PICARDIE)

L'étude réalisée à Creil constituait la principale campagne d'évaluation des performances des analyseurs automatiques utilisés pour la mesure des PM en France du programme des travaux du LCSQA en 2010. Elle avait notamment pour objectif de tester *in situ* les nouvelles versions de TEOM-FDMS (i.e. 1405f et 1405df) en PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub>. Cette campagne a également été l'occasion de vérifier la conformité à la méthode de référence de la version de TEOM-FDMS (1400ab + 8500c) classiquement utilisée au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Ces tests ont été mis en œuvre à la station Creil-Faïencerie d'Atmo Picardie, au printemps 2010, selon les modalités décrites dans le Tableau 1 et illustrées par la Figure 2. Ils ont été réalisés sous des conditions climatiques

contrastées, permettant d'intégrer une gamme de concentration ( $\sim 5\text{-}60\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) représentative des niveaux classiquement observés en zone de fond urbaine.

Il est à noter qu'un exercice d'intercomparaison de la mesure des  $\text{PM}_{10}$  impliquant six TEOM-FDMS 1405f, réalisé dans une deuxième partie de cette campagne de terrain, fera l'objet d'un rapport LCSQA spécifique dans le cadre de la fiche « intercomparaisons de stations de mesure ».

Enfin, cette étude a également permis la réalisation d'une campagne de type « démonstration d'équivalence » pour la mesure des  $\text{PM}_{2.5}$  à l'aide de jauges béta MP101M-RST (*Environnement SA*), dont les résultats sont détaillés dans le rapport 2010 relatif à la fiche « Mesure des particules en suspension par absorption de rayonnement béta ».



Figure 2 : Campagne 2010 d'évaluation des performances de mesure des TEOM-FDMS et jauges béta MP101M-RST à la station Creil-Faïencerie (printemps).

### 2.3 CAMPAGNES DE S<sup>T</sup> ROMAIN EN GAL ET SERPAIZE (EN PARTENARIAT AVEC ATMO RHONE-ALPES)

Le LCSQA/INERIS a réalisé deux campagnes de mesure PM en partenariat avec Atmo Rhône-Alpes en 2010, dans le cadre de la fiche « Méthodologie de détermination des zones géographiques concernées par les dépassements de seuils ». Ces campagnes, l'une en automne l'autre en hiver, mettaient en jeu la mesure co-localisée des  $\text{PM}_{2.5}$  et  $\text{PM}_{10}$  par TEOM-FDMS et gravimétrie selon les modalités décrites dans le Tableau 1.



La configuration du site de proximité automobile étudié dans le cadre de ces campagnes ne permettait pas l'installation des préleveurs en extérieur. Ces derniers n'étant pas réfrigérés, les filtres étaient stockés dans l'instrument, pendant une période maximale de 7 jours, à la température du moyen mobile les abritant. Ces conditions ne sont pas optimales pour la mesure gravimétrique car l'existence d'un gradient de température entre le milieu de prélèvement et l'environnement de stockage des filtres peut induire la perte de matière semi-volatile échantillonnée sur le filtre.

### 3. RESULTATS ET DISCUSSION

Une synthèse des résultats des exercices de comparaison à la méthode de référence réalisés lors des campagnes de mesure présentées ci-dessus est proposée dans le Tableau 2.

	préleveur	site <sup>†</sup>	n*	pen	« offset »	r <sup>2</sup>
PM <sub>10</sub>						
8500c	Ext. <sup>∞</sup>	urbain	38	0,97	-0,31	0,96
1405f	Ext. <sup>∞</sup>	urbain	37	1,00	-1,84	0,98
	Int. <sup>∞</sup>	rural	30	1,16	0,40	0,96
	Int. <sup>∞</sup>	prox.	33	1,07	1,04	0,96
1405df	Ext. <sup>∞</sup>	urbain	30	1,01	-2,86	0,97
PM <sub>2,5</sub>						
8500c	Ext. <sup>∞</sup>	urbain	22	0,95	1,79	0,99
	Int. <sup>∞</sup>	prox.	25	1,31	2,55	0,97
1405f	Ext. <sup>∞</sup>	urbain	37	0,95	0,18	0,99
1405df	Ext. <sup>∞</sup>	urbain	30	0,95	-0,49	0,98
PM <sub>2,5-10</sub>						
1405df	Ext. <sup>∞</sup>	urbain	30	1,01	-1,33	0,83

∞ : localisation du préleveur (extérieur/intérieur), † : typologie du site d'étude (prox.: proximité automobile), \* : nombre de paires de données disponibles

Tableau 2 : résultats des régressions orthogonales obtenues pour chaque exercice de comparaison à la méthode de référence.

D'une manière générale, on constate une très bonne corrélation entre les mesures réalisées par TEOM-FDMS et les mesures gravimétriques, aussi bien pour les PM<sub>10</sub> que pour les PM<sub>2,5</sub>, les coefficients de corrélations obtenus pour l'ensemble des exercices d'inter-comparaison étant toujours supérieurs à 0.95.

En revanche, ces résultats indiquent une très forte surestimation des mesures TEOM-FDMS par rapport aux mesures gravimétriques (jusqu'à environ 50% en moyenne pour les mesures PM<sub>2,5</sub> réalisées à Saint Romain en Gal) lorsque le préleveur était installé au sein d'un moyen mobile. Comme expliqué plus haut, le stockage des filtres à des températures bien supérieures à la température de l'air ambiant (gradients de température atteignant jusqu'à +30°C, en valeur instantanée, dans le cadre des études en moyen mobile) est susceptible d'engendrer la perte de matière semi-volatile lors de l'étape de stockage dans le préleveur. Il est donc très probable que les cas de forte surestimation observés ici

pour les mesures TEOM-FDMS soient, au moins pour partie, attribuables à une sous-estimation des concentrations ambiantes réelles en PM par les mesures gravimétriques. La corrélation observée entre l'écart relatif des concentrations de PM obtenues par TEOM-FDMS et par gravimétrie d'une part et la différence entre la température moyenne au sein du moyen mobile et la température moyenne ambiante tendent à confirmer cette hypothèse (Figure 3).

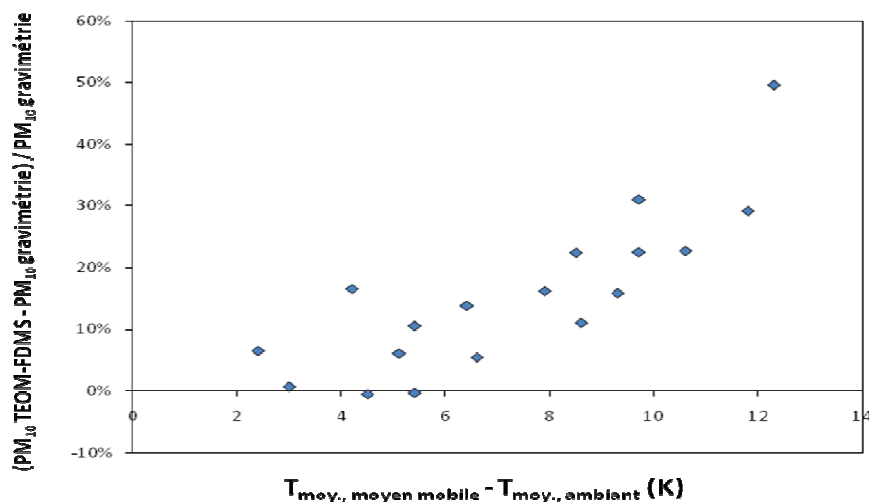


Figure 3 : Ecart relatif de la mesure TEOM-FDMS par rapport à la mesure gravimétrique (%) en fonction de la différence entre la température moyenne du moyen mobile et la température moyenne de l'air ambiant (Kelvin) lors de la campagne d'automne à Serpaize.

Ces observations confortent la position du groupe de normalisation européen pour la détermination des concentrations de PM dans l'air ambiant (GT 15 du CEN/TC 264) sur la nécessité de fixer une valeur limite de température de stockage des filtres sur site (23°C), dans le cadre de la révision de la norme EN 12341, à l'image de ce qu'il est déjà préconisé pour les  $PM_{2.5}$ . Cet artefact de mesure négatif étant, par définition, partie intégrante de la méthode de référence, il convient en effet de le maîtriser au mieux, afin notamment de permettre la compatibilité des normes sur la détermination des concentrations de PM et celles relatives aux espèces chimiques majeures (anions / cations et carbone élémentaire / organique).

De ce fait, les résultats obtenus pour ces campagnes de terrain ne sont pas conformes à la norme en vigueur pour la détermination des  $PM_{2.5}$  (NF EN 14907), ni à la future norme révisée pour la détermination des  $PM_{10}$  (NF EN 12341), et ne sont pas utilisés dans le cadre de la vérification d'équivalence détaillée ci-dessous. Notons que les deux normes précitées seront, à court terme, unifiées au sein de la norme EN 12341 révisée.

### 3.1 TEOM 1400AB + FDMS 8500C

Comme illustré par la Figure 4, les résultats obtenus en 2010 tendent à confirmer l'équivalence du couple TEOM 1400ab - FDMS 8500c utilisé en France depuis 2007 pour la mesure réglementaire des  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ . Ces résultats sont également en accord avec ceux obtenus en 2008 lors de l'exercice

d'intercomparaison des méthodes de mesure des  $PM_{10}$  organisé par le Joint Research Center et réalisé en partenariat avec Airparif à Bobigny<sup>(10)</sup>.

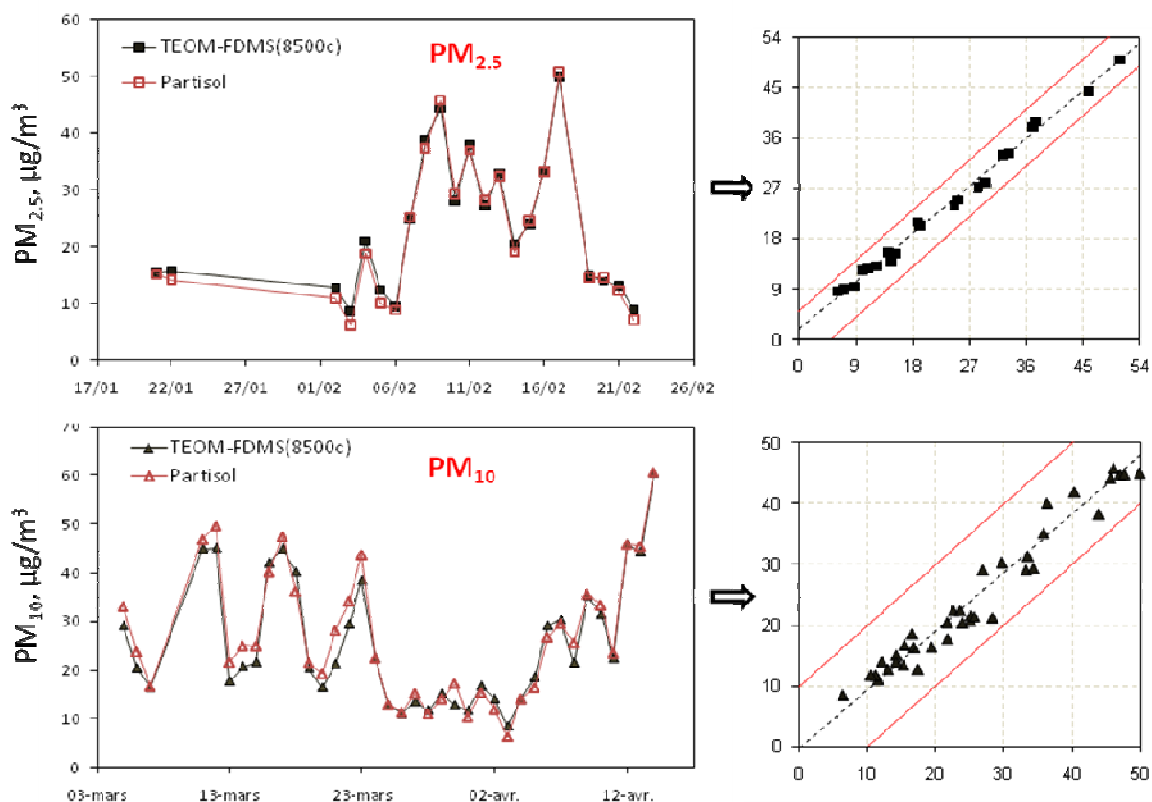


Figure 4 : Résultats des exercices d'intercomparisons TEOM-FDMS (1400ab + 8500c) / gravimétrie. A gauche : séries temporelles, à droite : régressions linéaires orthogonales et positionnement par rapport au « tunnel de confiance » permettant le respect d'une incertitude de 25% aux alentours d'une valeur limite/cible arbitrairement placée à  $40\mu g/m^3$  en  $PM_{10}$  et  $20\mu g/m^3$  en  $PM_{2.5}$ . Remarque pour le test en  $PM_{2.5}$ : coupure de courant puis difficultés de remise en route (nécessitant notamment le « re-chargement du soft ») entre le 23/01 et le 01/02.

### 3.2 TEOM-FDMS 1405F

Depuis la fin de l'année 2008, la société Ecomesure commercialise en France de nouvelles versions des TEOM (-FDMS) : les TEOM 1405, TEOM 1405d, TEOM-FDMS 1405f et TEOM-FDMS 1405df. En particulier, les modèles 1405f et 1405df présentent des caractéristiques susceptibles de faciliter la mesure de PM par les AASQA. Le 1405f consiste globalement en l'unification du TEOM 1400 et du module FDMS en un seul et même instrument, plus compact. Le 1405df est décrit dans la section 3.3.

Ces nouveaux outils sont amenés à remplacer les premières générations de TEOM-FDMS. Cependant, en 2008, il n'existait pas de preuves scientifiques indiquant leur adéquation avec les critères européens de mesures de PM. Une note du LCSQA envoyée à l'ensemble des AASQA en cours d'année 2008 recommandait donc de ne pas s'équiper de TEOM-FDMS 1405df dans l'immédiat, et d'attendre, si possible, avant de s'équiper en TEOM-FDMS 1405f. A la fin de l'année 2009, une vingtaine de modèles 1405f, et un 1405df, avaient néanmoins été achetés par différentes AASQA.

Différents tests réalisés en Europe et aux Etats-Unis en 2009 avaient mis en évidence d'importants défauts de conception de ces nouveaux instruments. Ces défauts de conception étaient notamment à l'origine de fortes oscillations du signal, ne semblant pas affecter considérablement la mesure journalière de PM mais entraînant une détérioration manifeste de la qualité des mesures (quart-)horaires.

En raison de ces défauts de conception, les premiers modèles de ces nouvelles versions de TEOM-FDMS ont dû être reconfigurés lors d'opérations de mise à jour (réalisées en plusieurs étapes) très pénalisantes pour les AASQA concernées. Les livraisons de 1405f ont également été stoppées entre la fin d'année 2009 et le début d'année 2010.

Les TEOM-FDMS 1405f utilisés dans le cadre de la campagne de Creil appartiennent à la première série d'instruments livrés en France et ont été reconfigurés avant leur utilisation pour cette campagne. Comme illustré par la Figure 5, les résultats obtenus lors de cet exercice d'intercomparaison ne remettent pas en cause l'équivalence présupposée des 1405f aux méthodes de référence pour la détermination des concentrations de  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ . Ainsi, s'ils ne peuvent être considérés comme une preuve d'équivalence, ces résultats tendent à légitimer l'utilisation de 1405f pour la mesure réglementaire.

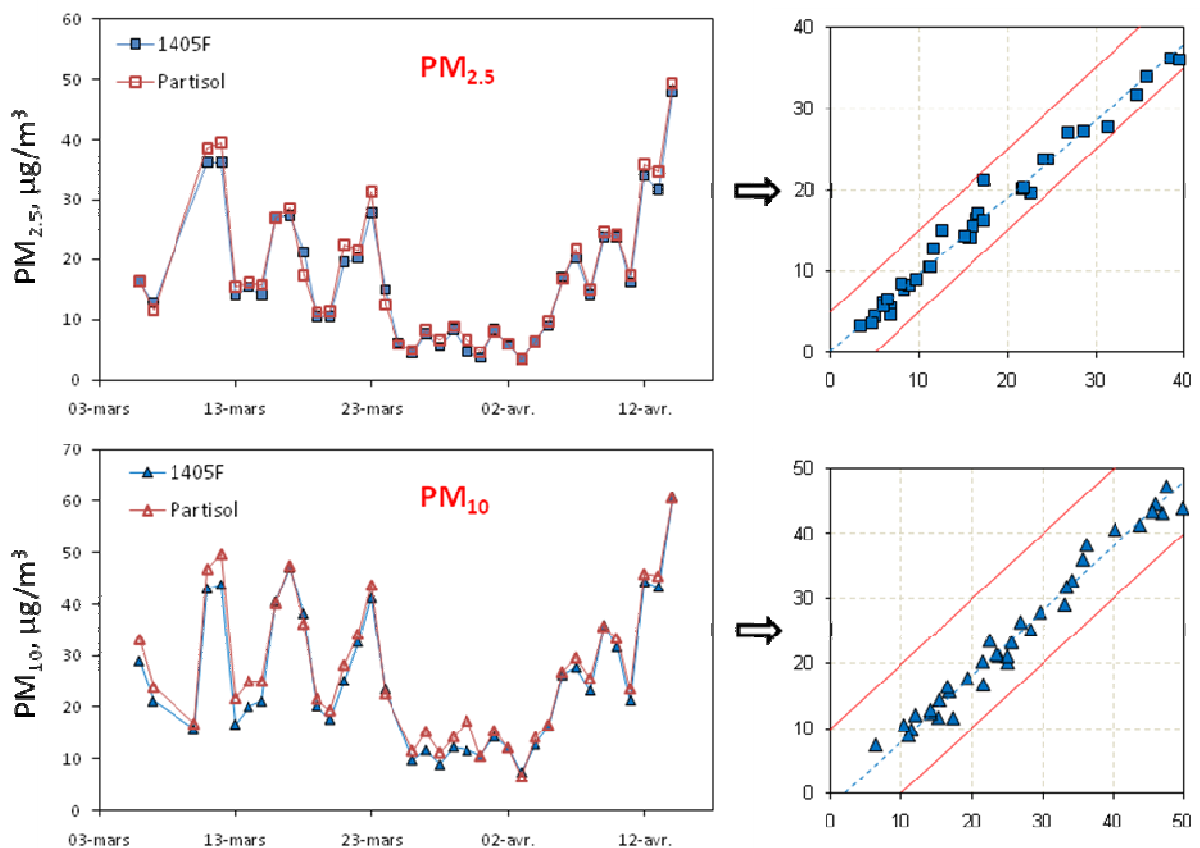


Figure 5 : Résultats des exercices d'intercomparisons 1405f / gravimétrie. A gauche : séries temporelles, à droite : régressions linéaires orthogonales et positionnement par rapport au « tunnel de confiance » permettant le respect d'une incertitude de 25% aux alentours d'une valeur limite/cible arbitrairement placée à  $40\mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $PM_{10}$  et  $20\mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $PM_{2.5}$ .

Il est en revanche à noter que les mesures horaires obtenues lors des périodes correspondant à de faibles niveaux de PM étaient relativement bruitées (Figure 6), vraisemblablement sous l'effet combiné de l'installation des instruments dans le flux d'air du système de climatisation de la station (cf. Figure 2) et d'une mauvaise fixation de la microbalance. Ce dernier problème, lié à un défaut de conception initial, a été pris en compte dans le cadre des programmes ultérieurs de reconfiguration des nouvelles générations de TEOM-FDMS.

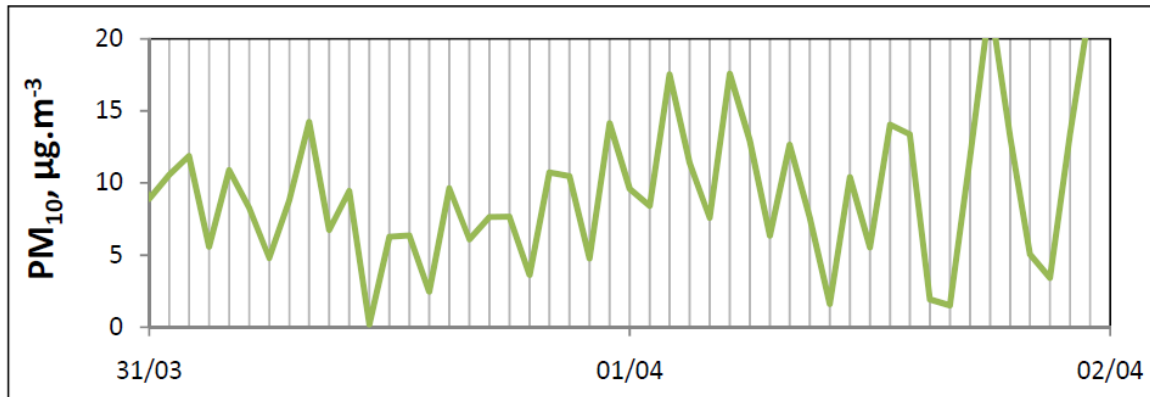


Figure 6 : Exemple de mesures horaires pour des concentrations de PM<sub>10</sub> relativement faibles.

### 3.3 TEOM-FDMS 1405DF

Le 1405df est équipé d'un impacteur virtuel (Figure 7) placé en aval de la tête de prélèvement, permettant la mesure simultanée des PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub>. Cet impacteur virtuel divise le flux en deux parts inégales, l'une contenant les grosses particules (dont le diamètre aérodynamique est compris entre 2,5 et 10µm) l'autre contenant les PM<sub>2.5</sub>, chacune dirigée vers un couple microbalance-module FDMS. La concentration de PM<sub>2.5</sub> est en réalité estimée en appliquant un facteur de correction tenant compte de la part de particules fines mesurées sur la ligne « coarse ». La concentration de PM<sub>10</sub> est obtenue en sommant les concentrations obtenues par chacun des couples microbalance-module FDMS.

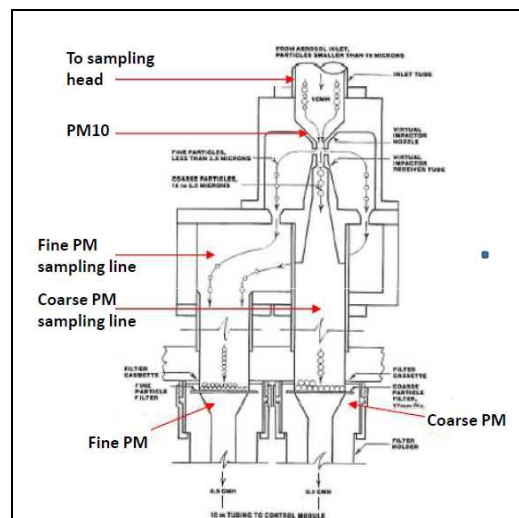


Figure 7 : Principe de fonctionnement d'un impacteur virtuel.

C'est en raison de cette modification technique dans la ligne d'échantillonnage, que le LCSQA préconise depuis 2008 de ne pas s'équiper en 1405df avant l'obtention des résultats définitifs des exercices de démonstrations d'équivalence, en cours en Allemagne et en Angleterre, et réalisés à la demande de la société *Thermo*.

Le LCSQA/INERIS avait par ailleurs réalisé dès 2008 et 2009 des premiers tests, en partenariat avec AIRAQ, Atmo Picardie et Atmo PACA en 2008 et 2009, sur ce type d'instruments<sup>(10-11)</sup>. Les résultats obtenus indiquaient une perturbation substantielle des données horaires (due, à nouveau, à des défauts de conception initiaux), mais une bonne qualité des mesures journalières.

Comme le montre la Figure 8, les tests réalisés en 2010 indiquent une bonne concordance des mesures  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$  aux méthodes de référence.

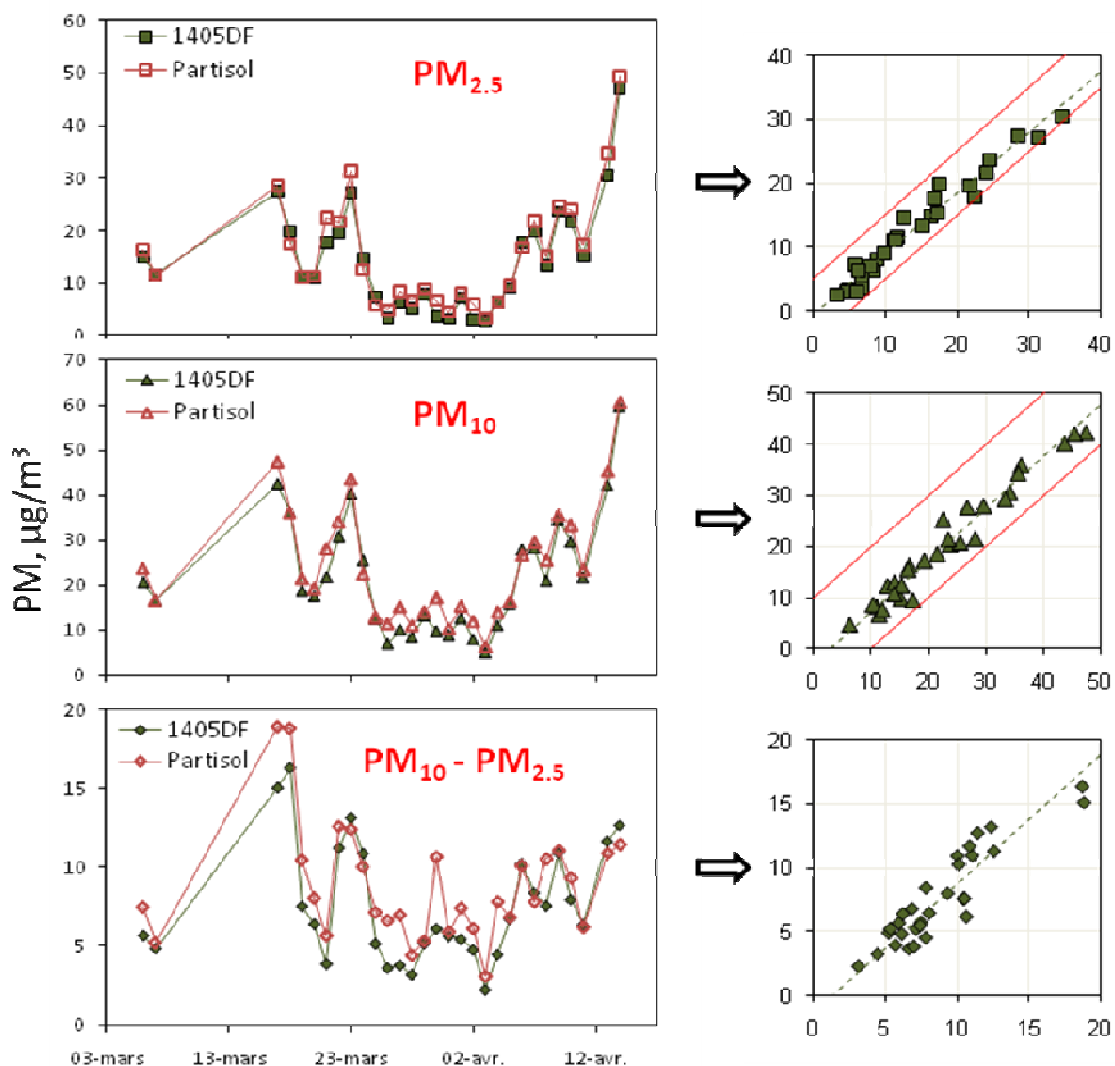


Figure 8 : Résultats des exercices d'intercomparisons 1405df / gravimétrie. A gauche : séries temporelles, à droite : régressions linéaires orthogonales et positionnement par rapport au « tunnel de confiance » permettant le respect d'une incertitude de 25% aux alentours d'une valeur limite/cible arbitrairement placée à  $40\mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $PM_{10}$  et  $20\mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $PM_{2.5}$ . Les figures du bas représentent la comparaison entre les mesures de la fraction grossière (« coarse particles ») et la différence des mesures gravimétriques en  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ .

Soulignons toutefois une sous-estimation globale des PM (et en particulier de la fraction grossière  $PM_{10-2.5}$ ), pour les périodes correspondant aux faibles concentrations ambiantes de PM et/ou correspondant aux rapports de concentration  $PM_{10}/PM_{2.5}$  les plus importants. Des tests complémentaires, ainsi que des retours d'expériences, doivent être mis en œuvre afin de mieux comprendre les raisons de ce phénomène, si tant est que ce dernier s'avère se répéter lors de plusieurs exercices d'intercomparaison à la méthode de référence.

Par ailleurs, l'instrument testé dans le cadre de la présente étude a été affecté par deux soucis techniques, consistant (i) au dysfonctionnement du module à effet Peltier et (ii) à celui de l'écran tactile. Ces deux pièces ont dû être remplacées dans les premiers jours de l'exercice d'intercomparaison présenté ici. Différents retours d'expérience indiquent que la deuxième avarie a fréquemment été rencontrée sur les premiers 1405f et 1405df. Il semble qu'une modification des composants électroniques permettant la communication avec cet écran tactile a depuis permis de résoudre ce défaut de conception initial.

### 3.4 INTERCOMPARAISON MULTI-INSTRUMENTS

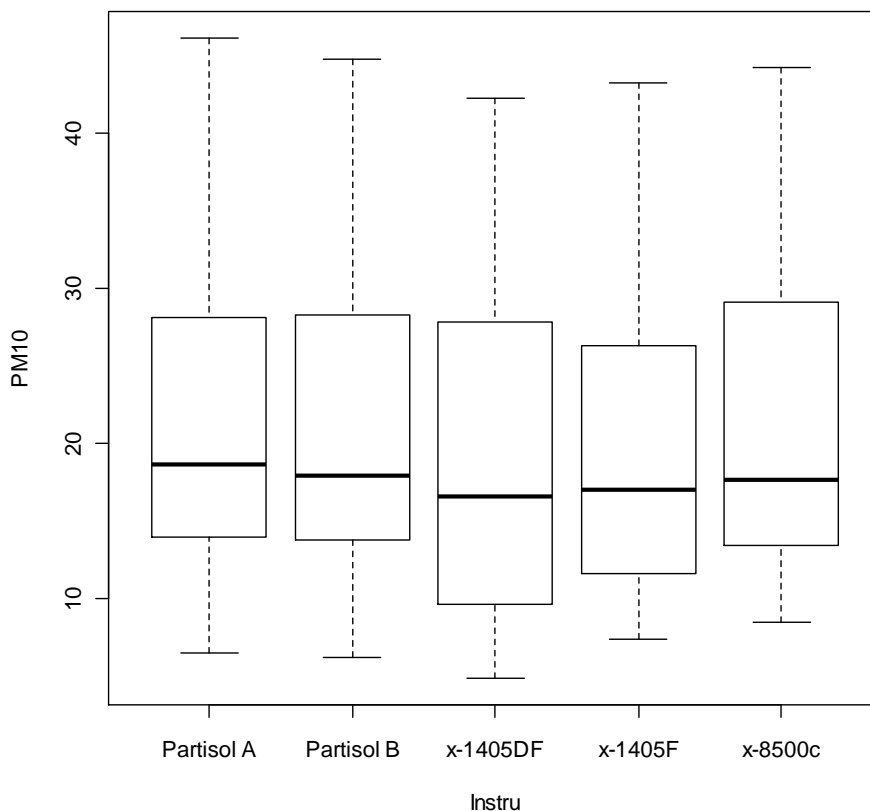


Figure 9 : Boîte de dispersion des mesures de concentrations de PM10 (moyennes 24h) réalisées à Creil simultanément à l'aide de deux préleveurs de type Partisol séquentiel, d'un couple 1400ab-8500c, d'un 1405f et d'un 1405df.

La campagne de terrain réalisée à Creil a permis la mesure des concentrations ambiantes de PM<sub>10</sub> simultanément par un TEOM-FDMS « classique », un TEOM-FDMS 1405f, un TEOM-FDMS 1405df, et par pesée de deux séries de filtres prélevés en parallèle sur une période de trois semaines. La Figure 9 présente la boîte de dispersion obtenue à l'aide de ce jeu de données. On observe une légère sous-estimation des mesures par 1405df (cf. section 3.3). Le test statistique associé (ANOVA à un facteur) ne suggère cependant pas de différences significatives entre les moyennes obtenues pour chacune des méthodes de mesure. Enfin, il est également intéressant de constater que la différence obtenue entre mesures par TEOM-FDMS « ancienne génération » et par 1405f est globalement équivalente (voire inférieure) à celle obtenue entre les deux mesures manuelles (méthode de référence).

#### **4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES**

Depuis le 1<sup>er</sup> janvier 2007, les TEOM-FDMS sont très largement utilisés en routine par l'ensemble des AASQA pour la surveillance des PM<sub>10</sub> et des PM<sub>2.5</sub>. Dans le cadre du déploiement et de la mise en œuvre de ces instruments, le LCSQA/INERIS est notamment chargé de suivre et d'optimiser 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 QC/QA basée sur celle décrite dans les normes utilisées pour la mesure des gaz classiques (O<sub>3</sub>, NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, CO). Ce travail se concrétise en particulier par l'élaboration, en partenariat avec les AASQA, d'un guide pour l'utilisation du TEOM-FDMS<sup>(12)</sup>, dont une nouvelle version a été proposée en 2010. L'étude présentée ici participe également à cette mission de suivi et d'optimisation des mesures de concentrations de PM. Les résultats obtenus ne remettent pas en cause l'équivalence des anciennes générations de TEOM-FDMS aux méthodes de référence, et laissent à penser que les nouvelles générations (1405f et 1405df), dont les premiers modèles présentaient d'importants défauts de conception, devraient également satisfaire à ces exigences normatives.

Soulignons ici que des campagnes de démonstration d'équivalence des 1405f et 1405df sont actuellement en cours en Allemagne et en Angleterre. Les résultats de ces exercices de démonstration d'équivalence réalisés à la demande de la société Thermo ne sont pour l'heure pas encore disponibles. Ces résultats seront analysés avec attention par le LCSQA/INERIS dès leur publication.

Il est également à noter que, suite à une demande appuyée de la Commission Européenne, le groupe de normalisation Européen relatif à la mesure des concentrations en PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub> dans l'air ambiant (GT 15 du CEN/TC 264) travaille actuellement à la rédaction d'une norme sur l'utilisation des analyseurs automatiques. Outre l'identification de critères techniques à respecter en vue d'une approbation par type et lors d'une utilisation en routine, la future norme sur les méthodes automatiques préconisera la vérification régulière de l'équivalence des instruments utilisés sur des sites représentatifs de l'ensemble du dispositif de surveillance, en complément de la démonstration d'équivalence initiale. Ainsi, des exercices d'intercomparaison, sur le même principe que ceux présentés ci-dessus mais couvrant des périodes plus longues, devront être mis en œuvre après la



publication de la révision de la Directive 2008/50/CE (prévue pour 2013). Dans un souci d'anticipation, le LCSQA/INERIS propose de réaliser ce type d'exercice dès 2011, en partenariat avec 2 ou 3 AASQA volontaires.

Par ailleurs, afin de compléter la connaissance de l'outil TEOM-FDMS, le LCSQA/INERIS a réalisé en 2009 une étude de laboratoire sur l'efficacité de sècheurs présents dans les modules FDMS 8500. Les résultats de cette étude mettent en évidence l'influence de la dépression sur l'efficacité de séchage. En outre, cette influence de la dépression s'accroît à mesure que l'humidité relative augmente. Cette étude n'a pas vocation à refléter le fonctionnement du sècheur sur le terrain dans la mesure où l'air échantillonné ne contenait pas de particules. En 2011, il est prévu de réaliser une étude similaire en conditions réelles. Cette étude permettra également d'étudier l'efficacité du sècheur dans des conditions ambiantes correspondant à des températures de point de rosée élevées.

Enfin, le LCSQA poursuivra en 2011 sa politique de participation active aux travaux de normalisation française et européenne sur la mesure des PM dans le cadre de la commission X43D et du GT 15 du CEN/TC 264. Il poursuivra également ses efforts de valorisation de l'expertise française dans ce domaine, notamment auprès d'AQUILA et lors de séminaires et conférences scientifiques.

## **5. 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](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<sub>2.5</sub> 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 PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub> - campagne de Bobigny, Rapport LCSQA, 2005

[http://www.lcsqa.org/system/files/Etude5\\_2005-PM-BOBIGNY-rapport-v3a.pdf](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 PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub> - campagne de Marseille, Rapport LCSQA, 2006

[http://www.lcsqa.org/system/files/TEOM\\_FDMS\\_PM10\\_PM2.5\\_Campagne\\_Marseille\\_vf.pdf](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

<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<sub>2.5</sub> et les PM<sub>10</sub> 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, LCSQA 2010

<http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/>

## **6. LISTE DES ANNEXES**

<b>Repère</b>	<b>Désignation</b>	<b>Nombre de pages</b>
Annexe I	Fiche descriptive de l'étude	2

# ANNEXE 1

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

**THEME 3 : Métrologie – Particules PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub>**

---

### **ETUDE N°3/2 : SUIVI ET OPTIMISATION DE L'UTILISATION DES TEOM-FDMS**

*Responsable de l'étude : INERIS*

#### 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.

Pour ce faire, un ensemble d'actions est proposé visant à garantir la qualité des données :

- la mise à jour du guide sur le fonctionnement du FDMS (valorisation des retours d'expérience des AASQA sur l'utilisation des FDMS), et l'accompagnement de la mise en œuvre des recommandations concernant l'assurance qualité
- une campagne d'essais des nouvelles versions TEOM-FDMS (TEOM1405f et TEOM1405df=)
- le suivi des travaux européens

#### 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<sub>10</sub>), et du TEOM-FDMS seul avec la norme EN14907 (PM<sub>2,5</sub>) a été réalisée, et un dossier d'équivalence déposé auprès de la commission européenne.

Depuis le 1<sup>er</sup> janvier 2007, les TEOM-FDMS sont donc très largement utilisés en routine sur l'ensemble du territoire pour la surveillance des PM<sub>10</sub> et des PM<sub>2,5</sub>, en vue du respect de la directive européenne sur la qualité de l'air.

Cette étude se place dans la continuité des études réalisées depuis plusieurs années sur les TEOM-FDMS, et notamment en 2007 (Intégration des modules FDMS et RST) et 2008/2009 (Accompagnement au déploiement des modules FDMS).

Un guide pour l'utilisation des TEOM-FDMS a notamment été élaboré dans le but de centraliser l'expérience et de proposer des solutions aux problèmes rencontrés. Ce document présente également une série de recommandations QC/QA afin de garantir la qualité des mesures.

#### Travaux proposés pour 2010

##### **1. Suivi de la mise en place de l'assurance qualité sur la mesure des PM par TEOM-FDMS**

L'équipe du LCSQA/INERIS s'attachera notamment, comme c'est le cas depuis 2006, à suivre le bon fonctionnement des TEOM-FDMS sur le terrain.

En 2010, un axe fort sera de suivre la mise en œuvre en routine des recommandations pour l'assurance qualité des mesures de PM par TEOM-FDMS par l'ensemble des AASQA.

Nous proposons d'organiser deux à trois réunions de retours d'expérience afin de rencontrer l'ensemble des AASQA. L'objectif est de suivre cette mise en place, et d'adapter les paramètres du contrôle qualité en routine en fonction de ces retours. Une attention toute particulière sera portée au cas spécifique des DOM.

Une enquête sera également réalisée afin d'évaluer le travail nécessaire ainsi que le surcoût généré pour le bon fonctionnement de ces appareils. L'enquête portera, entre autres, sur la durée de vie des pièces clés de l'appareil, ainsi que sur le temps passé sur la validation des données...

## 2. Evolution du TEOM et suivi de l'équivalence

Deux nouvelles versions du TEOM-FDMS sont maintenant mises sur le marché, remplaçant la série TEOM 1400 dont la vente est arrêtée depuis septembre 2009 : Le 1405f et le 1405df. Le premier dispose des mêmes éléments que la version précédente et par conséquent, ne semble pas remettre en cause la démonstration d'équivalence. En revanche, la version 1405df, effectuant simultanément la mesure des PM10 et des PM2.5, est équipée d'un impacteur virtuel placé entre la tête de prélèvement et les sécheurs.

**Il est donc proposé de vérifier la qualité des mesures par TEOM 1405f, et de tester le TEOM 1405df par rapport aux méthodes de référence pour la mesure des PM10 et des PM2,5.**

Pour cela, une campagne mettant en œuvre la méthode gravimétrique (en accord avec la norme EN 12341 pour la mesure des PM10 et avec la norme EN 14907 pour la mesure des PM2.5), ainsi que les TEOM 1405f PM10 et PM2,5, et le TEOM-FDMS 1405df sera réalisée. La campagne se déroulera dans la mesure du possible, en collaboration avec une AASQA sur le site d'une station urbaine de fond équipée de TEOM-FDMS classiques assurant la mesure des PM10 et des PM2.5 en routine. Lors de cette campagne comme demandé par la CS Particules, les jauges  $\beta$  ainsi qu'un compteur GRIMM sera également mis en parallèle des autres appareils.

Cette campagne permettra de tester in-situ les recommandations pour l'assurance qualité en routine établie dans le guide pour l'utilisation des TEOM-FDMS sur les nouveaux outils.

Par ailleurs, les résultats de cette campagne seront mis en valeur au sein d'AQUILA et GT15 du CEN afin de reconnaître le système d'assurance qualité des données PM mis en place en France, et faire profiter les autres états membres de notre expérience.

### Renseignements synthétiques

Titre de l'étude		<b>Suivi et optimisation de l'utilisation des TEOM-FDMS</b>	
Personne responsable de l'étude		A. Ustache, O. Favez	
Travaux		pérennes	
Durée des travaux pluriannuels			
Collaboration AASQA		Oui	
Heures d'ingénieur		EMD : -	INERIS : 640 LNE : -
Heures de technicien		EMD : -	INERIS : 400 LNE : -
Document de sortie attendu		Rapport annuel Guide pour l'utilisation du TEOM-FDMS	
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) + petit matériel	