



F. GAIE-LEVREL

# Développement d'une méthode d'étalonnage pour les instruments de mesure de concentration massique particulaire dans l'air ambiant

## *Development of a calibration method for on-line analyzer of atmospheric particle mass concentrations*

François GAIE-LEVREL, Charles MOTZKUS, Tatiana MACÉ et Sophie VASLIN-REIMANN

Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE), 1 rue Gaston Boissier, 75724 Paris Cedex 15, France, francois.gaie-levrel@lne.fr.

### Résumé

Le TEOM-FDMS (*Tapered Element Oscillating Microbalance with Filter Dynamics Measurement Systems*) est un instrument de mesure très répandu au sein du réseau national de surveillance de la qualité de l'air. À l'heure actuelle, cet appareil est étalonné à l'aide de masses étalons raccordées au SI mais dont les valeurs et les différences de masse ne sont pas représentatives des masses particulaires atmosphériques prélevées. De plus, l'utilisation de ces masses étalons ne permet pas de prendre en compte un éventuel dysfonctionnement du système de prélèvement en amont de la mesure de la masse et du système de filtration intrinsèque au TEOM-FDMS. Par conséquent, une nouvelle méthode d'étalonnage pour les TEOM-FDMS a été développée par la mise en place d'un système portable de génération de particules ayant des concentrations massiques connues et stables dans le temps. Cet article présente la caractérisation de ce générateur portable en termes de gamme de masses de référence, son couplage à quatre TEOM-FDMS différents et la comparaison globale entre les masses particulaires de référence définies et les masses moyennes pesées et lues obtenues pour chaque TEOM-FDMS impliqué dans cette étude.

**MOTS CLÉS** : GÉNÉRATEUR, PARTICULE, AÉROSOL, CONCENTRATION MASSIQUE, MASSE PARTICULAIRE, ÉTALONNAGE, TEOM-FDMS.

### Abstract

*The TEOM-FDMS (Tapered Element Oscillating Microbalance with Filter Dynamics Measurement Systems) is a common measuring instrument employed by the French air quality monitoring network.*

*This instrument is currently calibrated with calibration weights traceable to SI but having values and masses differences between each of them which are not representative of real atmospheric particle mass measurements. Moreover, these calibration weights do not allow detecting any technical problem of the TEOM-FDMS sampling system upstream the mass measurement and of the intrinsic TEOM-FDMS filtration system. In this way, a calibration method was developed using a portable particle generator system producing known and stable particle mass concentrations over time. In this paper, we present the characterization of this portable generation system in terms of reference range of particle masses, its coupling with four different TEOM-FDMS and the global comparison between the defined reference range of particle masses and the averaged weighed and measured masses obtained with each TEOM-FDMS implicated in this study.*

**KEY WORDS:** GENERATOR, PARTICLE, AEROSOL, MASS CONCENTRATION, PARTICULATE MASS, CALIBRATION, TEOM-FDMS.

### 1. Introduction

Le LCSQA (Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air) est le laboratoire d'expertise et de référence au service du Ministère chargé de l'écologie et des associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA) dans le domaine de la surveillance de la qualité de l'air ambiant. Il apporte au Ministère et à l'ensemble du réseau de surveillance, l'appui nécessaire pour les aspects stratégiques, techniques et scientifiques

dans la définition et la mise en œuvre de la politique de surveillance de la qualité de l'air. Les AASQA ont pour mission de mesurer les concentrations des polluants dans l'air ambiant. Parmi ces polluants, se trouvent les particules dont il convient de mesurer les concentrations massiques conformément à la directive européenne 2008/50/CE [1]. Ces mesures peuvent être effectuées en utilisant un analyseur automatique, appelé TEOM-FDMS (*Tapered Element Oscillating Microbalance with Filter Dynamics Measurement Systems*) [2, 3], constitué d'une microbalance à variation de fréquence.

À l'heure actuelle, ces instruments sont étalonnés à l'aide de masses étalons raccordées au Système international d'unités (SI). Ces dernières, ayant des valeurs de l'ordre de 80 mg à 100 mg, permettent de vérifier la constante d'étalonnage de la microbalance. Le contrôle de sa linéarité est effectué grâce à trois masses étalons ayant des différences de masse de l'ordre de 10 mg. En considérant un débit volumique du TEOM-FDMS de 3 L/min, la valeur limite pour les particules PM<sub>10</sub> (particules en suspension ayant des diamètres inférieurs à 10 µm) (50 µg/m<sup>3</sup> en moyenne journalière) représente une masse particulaire d'environ 2 µg sur 15 min de prélèvement. Les masses étalons et leur différence de masse ne sont donc pas représentatives des masses particulaires atmosphériques prélevées sur un quart d'heure. De plus, l'utilisation de ces masses étalons permet de vérifier le système de microbalance sans prendre en compte le système de prélèvement en amont de la mesure de la masse et du système de filtration intrinsèque à la microbalance pour lesquels un éventuel dysfonctionnement ne peut être diagnostiqué.

Ainsi, l'objectif de cette étude était de développer une méthode d'étalonnage des appareils de mesure des concentrations massiques particulaires dans l'air ambiant, tels que les TEOM-FDMS, pour des masses inférieures à celles des masses étalons et pour être réalisable dans des conditions proches de leur fonctionnement normal, c'est-à-dire avec la prise en compte de l'ensemble de leur système de prélèvement. De plus, cette méthode doit tenir compte des spécificités des AASQA, puisqu'elle doit être facilement mise en œuvre au sein de leurs stations de mesure pour l'étalonnage de leurs TEOM-FDMS. Cette méthode d'étalonnage a donc été développée en tenant compte des contraintes suivantes :

- générer et prélever des particules ayant des concentrations connues et stables dans le temps, d'une part sur le filtre du TEOM-FDMS en passant par le système de prélèvement (hors tête de prélèvement), et d'autre part sur un filtre externe ;
- comparer les masses mesurées par le TEOM-FDMS avec les masses de référence déterminées par la méthode gravimétrique sur le filtre externe.

Cet article présente la description du système portable de génération impliqué et sa caractérisation en termes de gamme de masses de référence. Y sont également présentés, le couplage du système à quatre TEOM-FDMS

différents et la comparaison globale entre les masses particulaires de référence définies et les masses moyennes pesées et lues avec chaque TEOM-FDMS impliqué dans cette étude.

## 2. Matériel et méthodes

### 2.1. Le système portable de génération d'aérosol

Le système utilisé est présenté en figure 1. Le système portable de génération est constitué de trois principales parties (fig. 1a, cadre en pointillés) :

- un système de filtration et sécheur d'air (*Air Supply System*, modèle 3074, TSI) alimenté par un compresseur portable ;
- un générateur du type nébuliseur (modèle 3076, TSI) afin de générer un aérosol polydispersé à partir de la nébulisation d'une solution de KCl ;
- deux sécheurs par diffusion (modèle 3062, TSI) permettant de sécher les particules de l'aérosol de KCl.

En aval du système portable de génération, une vanne quatre voies permet son couplage avec un TEOM-FDMS (fig. 1a). La figure 1b présente un schéma du couplage entre le générateur portable (représenté par un cadre en pointillés aux fig. 1a et 1b) et un TEOM-FDMS via l'utilisation de cette vanne quatre voies. En amont d'un essai, la vanne est en position n° 1 (fig. 1b), ce qui engendre l'évacuation de l'aérosol généré et permet le couplage d'un TEOM-FDMS à un filtre total. Dès le début d'un essai, la vanne est tournée en position n° 2 (fig. 1b). Dans cette configuration, l'aérosol généré est prélevé via le TEOM-FDMS. À la fin d'un essai, la vanne est mise à nouveau en position n° 1 et le filtre du TEOM-FDMS est pesé par la méthode de la double pesée par comparaison à une tare. La figure 1c présente une photographie du système portable de génération avec la vanne quatre voies.

Pour cette étude, l'aérosol généré est issu de la nébulisation de 1L d'une solution aqueuse de chlorure de potassium (KCl, AnalaR Normapur) avec une concentration de 4 g/L. Cette concentration a été choisie afin que le chargement particulaire (quantité totale de particules produites), intrinsèque à la nébulisation d'une telle solution, soit de quelques milligrammes sur 30 min de prélèvement. Ceci constitue une première étape de développement qui est actuellement en cours d'optimisation vers des chargements plus faibles, sachant que le chargement particulaire varie linéairement avec la concentration de la solution. Afin d'éviter tout processus de saturation de la solution lors de sa nébulisation, une nouvelle solution de KCl a été fabriquée pour chaque essai par dissolution des cristaux dans de l'eau MilliQ Ultrapure. Dans le but de caractériser l'aérosol produit et de qualifier le générateur en terme de répétabilité et de reproductibilité, des mesures ont été effectuées grâce à un analyseur à mobilité différentielle (DMA, modèle 3080, TSI) couplé à un compteur de particules (CPC, modèle 3775, TSI) constituant alors un SMPS (*Scanning Mobility Particle Sizer*)

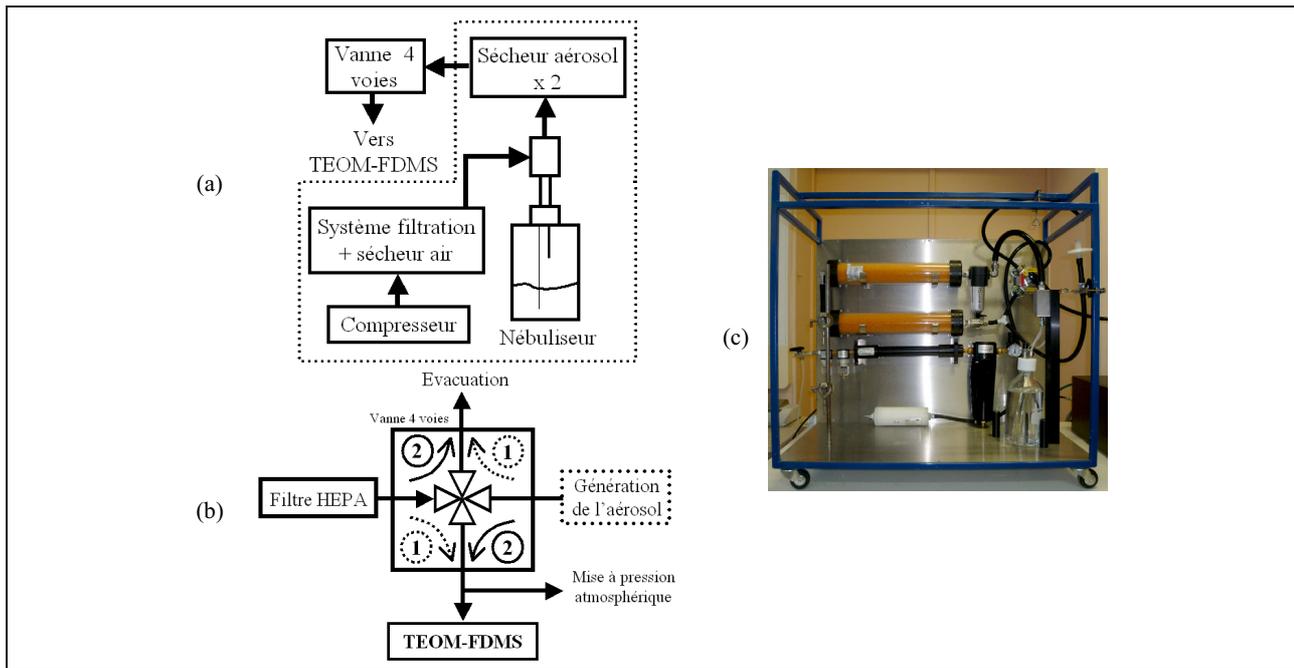


Fig. 1. – (a) Schéma du système portable de génération d'aérosol composé : d'un système d'air comprimé filtré et séché alimenté par un compresseur, d'un nébuliseur, et de deux sècheurs par diffusion (cadre en pointillés), et d'une vanne quatre voies, (b) description de la vanne quatre voies utilisée pour le couplage du système portable de génération avec un TEOM-FDMS, (c) photo du système portable de génération d'aérosol.

qui permet d'effectuer la mesure de sa distribution granulométrique submicrométrique en nombre et en masse. Pour ce faire, le SMPS a été couplé au générateur portable de la même façon que le porte-filtre externe ou un TEOM-FDMS. Quinze mesures ont été effectuées sur 35 min avec un pas temporel de 2 min et 15 s correspondant au temps nécessaire au SMPS pour balayer la gamme de diamètre prise en compte. Cette caractérisation est présentée au paragraphe 3.1.

## 2.2. Caractérisation du générateur portable avec un porte-filtre externe

La caractérisation du générateur de particules avec le porte-filtre externe consiste à prélever sur un filtre externe les particules produites avec le générateur, puis à le peser avec une balance de précision afin de déterminer la masse de particules prélevées sur un temps donné. Cette méthode gravimétrique permet :

- de déterminer et de comparer les valeurs des masses de particules fournies par les mesures « TEOM-FDMS » ;
- de déterminer les incertitudes de répétabilité et de reproductibilité dans le temps du générateur de particules.

Pour ce faire, un porte-filtre classique de 47 mm a été couplé au générateur portable en aval de la vanne quatre voies et à la place du TEOM-FDMS indiqué sur les figures 1a et 1b. Le même protocole d'utilisation de la vanne décrit au paragraphe 2.1 a été utilisé. Des

filtres Pallflex® similaires à ceux utilisés au sein des TEOM-FDMS, à savoir de type Emfab™ TX40HI20-WW, constitué de microfibrilles de verre borosilicate renforcées avec un tissu de verre tissé et collé grâce à du PTFE ont été utilisés. En aval du porte-filtre, un régulateur de débit massique (RDM) permet une régulation du débit de prélèvement à  $(3,014 \pm 0,010)$  L/min. Ce RDM a été étalonné par comparaison avec un étalon de travail de débit massique Molbloc™ lui-même étalonné par méthode gravimétrique dynamique. Notons alors que ce débit est volontairement différent de celui associé à la méthode normalisée décrite au sein de la norme NF EN 12341 [4], à savoir  $2,3 \text{ m}^3/\text{h}$  (soit 38 L/min) afin d'être en cohérence avec le débit du TEOM-FDMS. Dans le cadre de cette caractérisation, des temps de prélèvement de 12 min, 24 min et 36 min ont été adoptés afin d'être en accord avec le fonctionnement du TEOM-FDMS en considérant un temps de rotation de la vanne du module FDMS de 6 min entre la base et la référence. Pour chacun de ces trois temps de prélèvement, 27 essais ont été réalisés sur 9 jours, avec une solution de KCl différente pour chacun de ces essais, afin d'obtenir une caractérisation globale du système portable de génération avec la prise en compte de son déplacement sur le terrain. À l'instar des filtres des TEOM-FDMS, les filtres externes ont été pesés par la méthode de la double pesée par comparaison à une tare.

## 2.3. Les TEOM-FDMS

En aval de la caractérisation du générateur portable avec le porte-filtre externe, le système de génération a

Tableau 1

Paramètres caractéristiques des distributions en nombre et en masse de l'aérosol de KCl généré.

		Valeur moyenne	Écart type de répétabilité	Écart type de reproductibilité
Distribution en nombre	Concentration moyenne (particules/cm <sup>3</sup> )	$2,0 \times 10^7$	$5,3 \times 10^5$	$5,3 \times 10^5$
	Diamètre médian (nm)	57	1	1
	Diamètre moyen (nm)	72	1	2
	Diamètre modal (nm)	52	1	3
Distribution en masse	Concentration moyenne (µg/m <sup>3</sup> )	$2,73 \times 10^4$	$8,7 \times 10^2$	$1,4 \times 10^3$
	Chargement massique (µg/min)	82	3	4

été couplé avec différents TEOM-FDMS. Ce couplage consiste à générer des particules de KCl et à comparer les masses pesées et lues liées à la mesure « TEOM-FDMS » avec les masses obtenues lors des mesures « porte-filtre externe » pour des paramètres de génération identiques.

Dans le cadre de cette étude, quatre TEOM-FDMS, de trois différents types, ont été impliqués, à savoir :

- TEOM-FDMS n° 1 et 2 : deux TEOM 1400AB équipés de modules FDMS 8500C ;
- TEOM-FDMS n° 3 : un TEOM 1400AB équipé d'un module FDMS 8500B avec un sécheur de type C ;
- TEOM-FDMS n° 4 : un TEOM-FDMS 1405F.

Ces choix ont été effectués afin de pouvoir mener des tests avec différents TEOMS-FDMS représentatif du parc national de surveillance. C'est pourquoi, deux types de TEOM 1400AB « ancienne génération » ont été utilisés avec deux types de module FDMS ayant un même type de sécheur. Le TEOM-FDMS 1405F représente la nouvelle génération des TEOM-FDMS actuellement vendu par le fabricant. Pour ces couplages, le montage expérimental adopté a été présenté aux figures 1a et 1b.

Pour chaque TEOM-FDMS, neuf essais ont été réalisés sur trois jours pour chaque temps de prélèvement de 12 min, 24 min et 36 min. Pour chacun de ces essais, de nouveaux filtres ont été utilisés au sein des microbalances TEOM et des modules FDMS. Une nouvelle solution de KCl a également été utilisée pour chacun de ces essais. Concernant l'étude d'impact du déplacement du générateur sur le terrain, des essais ont été réalisés avec le TEOM-FDMS n° 1 avant et après ce déplacement. Les résultats associés sont présentés au sein du paragraphe suivant.

### 3. Résultats et discussions

#### 3.1. Caractérisation de l'aérosol généré

Dans le but de caractériser l'aérosol produit à partir d'une solution de KCl à 4 g/L, des mesures ont été

effectuées grâce au SMPS précédemment décrit. Les différents paramètres caractéristiques des distributions en nombre et en masse obtenues sont présentés au sein du tableau 1. À noter que la distribution granulométrique en masse (en µg·cm<sup>-3</sup>) est calculée à partir de la distribution en nombre en prenant en compte la masse volumique des particules de KCl ( $\rho = 1,98 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ). Le diamètre médian correspond à la valeur autour de laquelle se partage par moitié le nombre de particules alors que le diamètre moyen correspond à la moyenne arithmétique. Le diamètre modal correspond à la valeur pour laquelle il y a le plus grand nombre de particules. Les écarts types de répétabilité et de reproductibilité associés ont été calculés selon la norme ISO 5725-2 [5].

L'aérosol généré est donc caractérisé par une distribution polydispersée autour d'un diamètre modal égal à  $(52 \pm 3)$  nm avec l'incertitude associée correspondant à l'écart type de reproductibilité. Le chargement massique obtenu est égal à  $(82 \pm 4)$  µg/min. Il est important de préciser que cette valeur n'est pas encore strictement représentative des conditions atmosphériques. Cependant, ce travail constitue une première étape de développement afin de s'orienter vers des chargements plus faibles. D'un point de vue global, les écarts types relatifs de répétabilité et de reproductibilité obtenus sont respectivement égaux à 3,7 % et 4,9 % pour le chargement massique et compris entre 1,4 % et 5,8 % pour les différents diamètres statistiques pris en compte.

#### 3.2. Détermination de la reproductibilité du générateur portable avec le porte-filtre externe

Le tableau 2 présente les masses moyennes pesées du filtre inséré dans le porte-filtre externe pour des temps de prélèvement de 12 min, 24 min et 36 min et ceci pour les 27 essais réalisés avec la prise en compte du déplacement du générateur sur le terrain. Les écarts types de répétabilité et de reproductibilité ont été calculés selon la norme ISO 5725-2 [5].

Les écarts types relatifs de répétabilité et de reproductibilité sont respectivement compris entre 2,3 % et 2,8 % et entre 3,2 % et 4,0 % pour les masses pesées du filtre inséré dans le porte-filtre externe. Ainsi,

Tableau 2

Masses moyennes pesées du filtre inséré dans le porte-filtre externe pour des temps de prélèvement de 12, 24 et 36 min ( $k = 1$ ).

Temps de prélèvement (min)	Masse moyenne ( $\mu\text{g}$ )	Écart type de répétabilité		Écart type de reproductibilité	
		Absolu ( $\mu\text{g}$ )	Relatif (%)	Absolu ( $\mu\text{g}$ )	Relatif (%)
12	1 259,5	35,2	2,8	50,3	4,0
24	2 506,7	57,5	2,3	81,4	3,2
36	3 759,2	88,1	2,3	121,0	3,2

Tableau 3

Masses moyennes lues et pesées liées à la mesure « TEOM-FDMS » pour des temps de prélèvement de 12, 24 et 36 min.

		Temps de prélèvement (min)	Masse moyenne ( $\mu\text{g}$ )	Écart type de répétabilité		Écart type de reproductibilité	
				Absolu ( $\mu\text{g}$ )	Relatif (%)	Absolu ( $\mu\text{g}$ )	Relatif (%)
TEOM-FDMS n° 1 AVANT déplacement	Lue	12	621,1	12,8	2,1	22,5	3,6
	Pesée		595,6	13,4	2,3	19,3	3,2
	Lue	24	1 257,3	34,4	2,7	43,0	3,4
	Pesée		1 211,2	24,6	2,0	35,0	2,9
	Lue	36	1 923,7	40,8	2,1	42,0	2,2
	Pesée		1 844,8	27,9	1,5	27,9	1,5
TEOM-FDMS n° 1 APRES déplacement	Lue	12	630,8	7,8	1,2	7,8	1,2
	Pesée		605,2	9,0	1,5	9,0	1,5
	Lue	24	1 256,3	14,6	1,2	14,6	1,2
	Pesée		1 207,5	10,0	0,8	10,0	0,8
	Lue	36	1 910,6	31,3	1,6	38,7	2,0
	Pesée		1 834,4	31,2	1,7	39,2	2,1
TEOM-FDMS n° 2	Lue	12	677,5	15,9	2,3	24,5	3,6
	Pesée		651,4	22,8	3,5	27,7	4,2
	Lue	24	1 372,1	43,0	3,1	44,2	3,2
	Pesée		1 313,7	39,9	3,0	40,9	3,1
	Lue	36	2 048,2	36,5	1,8	46,1	2,3
	Pesée		1 960,4	40,9	2,1	46,4	2,4
TEOM-FDMS n° 3	Lue	12	641,9	11,0	1,7	11,0	1,7
	Pesée		628,6	18,0	2,9	18,6	3,0
	Lue	24	1 298,8	9,0	0,7	12,9	1,0
	Pesée		1 251,1	9,6	0,8	9,6	0,8
	Lue	36	1 956,1	26,8	1,4	36,8	1,9
	Pesée		1 876,5	22,5	1,2	36,5	1,9
TEOM-FDMS n° 4	Lue	12	568,7	29,3	5,1	29,3	5,1
	Pesée		604,1	20,3	3,4	20,3	3,4
	Lue	24	1 196,2	38,6	3,2	38,6	3,2
	Pesée		1 223,3	23,5	1,9	23,5	1,9
	Lue	36	1 794,1	48,6	2,7	48,7	2,7
	Pesée		1 820,9	50,5	2,8	50,5	2,8

cette caractérisation globale permet de déterminer les masses de référence pour les trois temps de prélèvement pris en compte lors de cette étude, à savoir ( $1\ 260 \pm 101$ )  $\mu\text{g}$  ; ( $2\ 507 \pm 163$ )  $\mu\text{g}$  et ( $3\ 759 \pm 242$ )  $\mu\text{g}$  à 12 min, 24 min et 36 min, respectivement. Les incertitudes associées correspondent à deux fois l'écart type de reproductibilité ( $k = 2$ ). Comme mentionné précédemment à plusieurs reprises, ces masses particulières de références ne sont pas encore strictement représentatives des conditions atmosphériques et ce travail représente une première étape de développement afin d'optimiser la génération de particules vers des chargements massiques plus faibles et donc plus représentatifs.

### 3.3. Comparaison des masses lues et pesées obtenues avec les TEOM-FDMS

Le tableau 3 présente les masses moyennes et le traitement statistique, en termes de répétabilité et de reproductibilité, effectué en accord avec la norme ISO 5725-2 [5], pour les masses lues sur chaque TEOM-FDMS et les masses pesées des filtres insérés au sein de chacun d'entre eux pour des temps de prélèvement de 12, 24 et 36 min.

Les résultats montrent que lors de ces essais, des écarts relatifs entre les valeurs pesées du filtre TEOM-FDMS et les valeurs lues sur le TEOM-FDMS ont été

observés. Ainsi, pour les TEOM-FDMS de type 1400AB, les masses lues sont supérieures aux masses pesées des filtres avec des écarts relatifs de 5,9 % maximum pour le TEOM-FDMS n° 1 et de 6,9 % maximum pour les TEOM-FDMS n° 2 et n° 3. Cet effet n'a pas été constaté lors des essais effectués avec le TEOM-FDMS n° 4 (TEOM-FDMS 1405F). Par contre, pour ce TEOM-FDMS n° 4, une variabilité plus importante des écarts relatifs entre les masses lues et pesées a été obtenue. En effet, les écarts relatifs sont compris entre 0,4 % et 8,0 % pour ce TEOM-FDMS (soit une variabilité de 7,6 %), alors que les trois autres TEOM-FDMS présentent des variabilités de 3,5 % ; 4,9 % et 6,7 % respectivement.

Concernant les masses moyennes pesées et lues liées au TEOM-FDMS n° 1 avant le déplacement du générateur, les écarts types relatifs de répétabilité et de reproductibilité sont respectivement compris entre 1,5 % et 2,7 % et entre 1,5 % et 3,6 %. Pour les masses moyennes pesées et lues liées au TEOM-FDMS n° 1 après déplacement, les écarts types relatifs de répétabilité et de reproductibilité sont respectivement compris entre 0,8 % et 1,7 % et entre 0,8 % et 2,1 %. Ceci conforte l'impact limité d'un déplacement du générateur sur sa reproductibilité. Concernant le TEOM-FDMS n° 2, les écarts types relatifs de répétabilité et de reproductibilité sont respectivement compris entre 1,8 % et 3,5 % et entre 2,3 % et 4,2 %. De plus faibles écarts types relatifs de répétabilité et de reproductibilité ont été obtenus dans le cadre des essais liés au TEOM-FDMS n° 3, à savoir inférieur à 3,0 % au maximum. Dans le cadre des essais liés au TEOM-FDMS n° 4, les écarts types relatifs maximum de répétabilité et de reproductibilité sont égaux à 5,1 % et sont donc les plus importants de l'étude. Ceci est cohérent avec la plus grande variabilité observée concernant les écarts relatifs entre les masses lues et pesées. Dans le cas de ce TEOM-FDMS n° 4, ces écarts plus importants peuvent être associés au fait que ces TEOM-FDMS de nouvelle génération présente une instabilité de mesure plus importante en comparaison avec les anciennes versions, en terme de signaux de la charge du filtre [6].

### 3.4. Comparaison des masses obtenues avec les TEOM-FDMS et le porte-filtre externe

Comme mentionné précédemment, l'objectif était de comparer ensuite les masses moyennes pesées et lues pour chaque TEOM-FDMS avec les masses de référence mesurées grâce au porte-filtre externe. Les figures 2a et 2b présentent respectivement une comparaison des masses moyennes pesées et lues « TEOM-FDMS » avec les masses pesées de référence déterminées grâce au porte-filtre externe (données des tabs. 2 et 3). Chacun des dix graphiques des figures 2a et 2b présente une bande grise identique définie par les masses de référence mesurées grâce au porte-filtre externe (tab. 2) plus ou moins deux fois l'écart type de reproductibilité associé ( $k = 2$ ). Les points correspondent aux masses moyennes pesées (fig. 2a, carrés noirs) et lues (fig. 2b, ronds noirs) pour chacun des quatre TEOM-FDMS impliqués dans cette étude. Compte-tenu du fonctionnement du TEOM-FDMS (6 min de prélèvement sur le filtre du TEOM puis 6 min

sur le filtre total du FDMS), ces masses moyennes ont été multipliées par un facteur 2 afin de pouvoir les comparer avec les masses de référence. Les barres d'incertitudes associées correspondent à deux fois l'écart type de reproductibilité ( $k = 2$ ).

La prise en compte des incertitudes élargies de reproductibilité ( $k = 2$ ) comme incertitudes de mesure amène à une superposition des mesures « TEOM-FDMS » avec la bande de référence et donc à une validation des mesures de masses pesées et lues « TEOM-FDMS ». Dans le cas d'une « non-superposition » de ces mesures avec la bande grise de référence, des investigations techniques auraient dû être menées afin d'expliquer ce phénomène probablement causé par une défaillance technique. Par ailleurs, l'effet de « surestimation » des masses lues par rapport aux masses pesées, observé pour les TEOM-FDMS n° 1, 2 et 3 (voir § 3.3), devient non significatif avec la prise en compte des incertitudes associées.

## 4. Conclusion et perspective

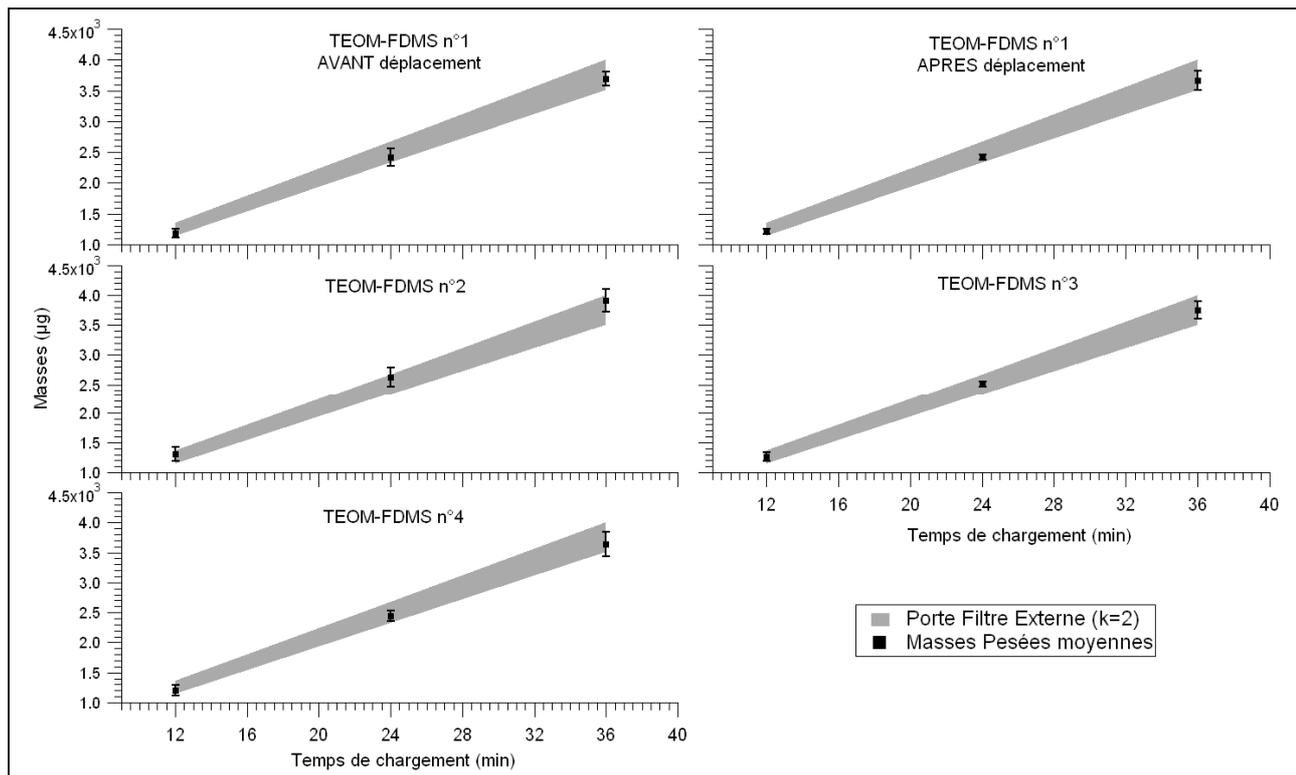
Cette étude a permis de développer une méthode d'étalonnage en masse des appareils de mesure des concentrations massiques particulières dans l'air ambiant de type TEOM-FDMS consistant à :

- générer et prélever des particules ayant des concentrations connues et stables dans le temps, d'une part sur le filtre du TEOM-FDMS en passant par le système de prélèvement (hors tête de prélèvement), et d'autre part sur un filtre externe ;
- comparer les masses mesurées par le TEOM-FDMS avec les masses « vraies » mesurées par la méthode gravimétrique sur le filtre externe.

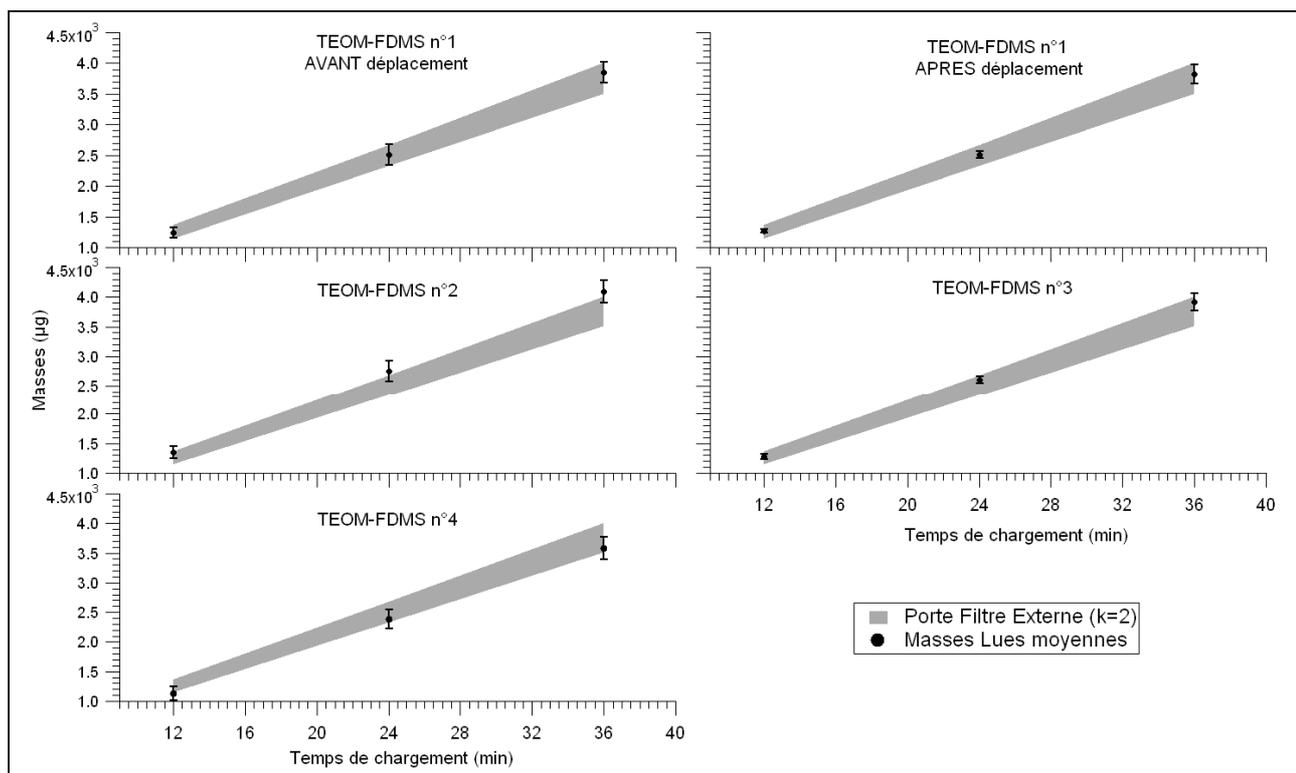
Par ailleurs, cette méthode permet un étalonnage des TEOM-FDMS pour des valeurs de masse inférieures à celles des masses étalons actuellement utilisées et réalisable dans des conditions proches de leur fonctionnement « normal », à savoir lorsque le TEOM-FDMS est en situation de prélèvement particulaire.

Lors de cette étude, un domaine de masses particulières de référence a été déterminé grâce aux mesures « porte-filtre externe » et calculé pour 27 expériences menées sur neuf jours. Les masses de référence obtenues aux temps de prélèvement de 12, 24 et 36 min, en prenant en compte les écarts types de reproductibilité ( $k = 2$ ) calculés en appliquant la norme ISO 5725-2, sont respectivement égales à  $(1\ 260 \pm 101) \mu\text{g}$  ;  $(2\ 507 \pm 163) \mu\text{g}$  et  $(3\ 759 \pm 242) \mu\text{g}$ .

En aval de cette caractérisation, le générateur portable a été couplé à quatre TEOM-FDMS. Une comparaison globale a ainsi été effectuée entre le domaine de masses de référence défini et les masses moyennes pesées et lues obtenues pour chacun des quatre TEOM-FDMS impliqués dans cette étude. Il ressort de cette comparaison une validation des mesures « TEOM-FDMS », pesées et lues, avec les mesures gravimétriques. Les résultats ont conduit à des écarts types relatifs de répétabilité et de reproductibilité inférieurs à 5,1 %.



(a)



(b)

Fig. 2. – Comparaison des masses moyennes (a) pesées et (b) lues obtenues pour chacun des quatre TEOM-FDMS impliqués dans cette étude avec le domaine de masses de référence lié à la mesure « porte-filtre externe » (bandes grises, identiques pour chaque graphique).

Ainsi, dans le cadre de cette étude, des masses de particules comprises entre 1 et 4 mg ont été générées à des temps de prélèvement de 12, 24 et 36 min. À très court terme, il est prévu d'ajuster la procédure de cette méthode afin de générer des masses particulaires plus faibles et donc plus représentatives vis à vis des mesures atmosphériques. En tenant compte des spécificités des AASQA afin que le générateur portable soit facilement mis en œuvre dans leurs stations de mesure pour l'étalonnage des TEOM-FDMS, une miniaturisation du système portable actuel est prévue afin de rendre le système plus léger et donc plus facilement transportable et plus autonome sans nécessité de source électrique. Ce générateur miniaturisé sera également développé dans l'objectif d'appliquer la procédure à l'étalonnage de jauges bêta également utilisées au sein du réseau national de surveillance de la qualité de l'air pour la mesure des concentrations massiques particulaires en temps réel par absorption de rayonnement bêta. Ceci permettra de rendre le système portable de génération plus versatile.

### Remerciements

Les auteurs adressent leurs chaleureux remerciements à Olivier Favez, Stéphane Verlhac, Robin Aujay et Eva Leoz pour leur accueil au sein de leur laboratoire de l'INERIS et pour la mise à disposition des TEOM-FDMS impliqués dans cette étude.

---

Article reçu le 5 décembre 2014, version révisée reçue le 5 mars 2015.

### Références

- [1] Directive 2008/50/EC of the European Parliament and of the Council of 21 May 2008 on ambient air quality and cleaner air for Europe, *Official J.*, **L152**, 1–44, European Parliament, 2008.
- [2] PATASHNICK H. et RUPPRECHT E.G., "Continuous PM<sub>10</sub> measurements using the tapered element oscillating microbalance", *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **41**, 1991, 1079-1083.
- [3] MEYER M.B., PATASHNICK H. et AMBS J.L., "Ongoing development of a continuous reference standard particulate matter mass monitor for ambient air", presented at *the Symposium on Air Quality Measurement Methods and Technology*, San Fransisco, CA, Pittsburg, USA, 2002, Air and Waste Manage. Assoc.
- [4] NF EN 12341, 2014, « Air ambiant – Méthode normalisée de mesurage gravimétrique pour la détermination de la concentration massique MP10 ou MP2,5 de matière particulaire en suspension ».
- [5] NF ISO 5725-2, 1994, « Application de la statistique – Exactitude (justesse et fidélité) des résultats et méthodes de mesure – Partie 2 : méthode de base pour la détermination de la répétabilité et de la reproductibilité d'une méthode de mesure normalisée ».
- [6] VERLHAC S., « Guide méthodologique pour la surveillance des PM10 et PM2,5 par TEOM-FDMS dans l'air ambiant », Rapport LCSQA, novembre 2013.