

Evaluation et calibration d'un LIDAR DIAL Expérience avec SO₂ et O₃

Tamara MENARD ⁽¹⁾, Yves GODET ⁽¹⁾, Michel NOMINE ⁽¹⁾, Jean-Pierre WOLF ⁽²⁾

(1) INERIS - Parc Technologique ALATA - B.P. 2
60550 Verneuil-en-Halatte

(2) UCB Lyon 1 - LASIM - bât 205
69622 Villeurbanne Cedex

I - Principes

Les appareils de mesures de la pollution atmosphérique en réseau font l'objet d'une évaluation selon un mode opératoire précisé dans la norme NF X20-300 en vue de déterminer leurs principales caractéristiques métrologiques soit :

- le temps de réponse,
- la linéarité et la droite de calibrage,
- les limites de décision, de détection et de quantification,
- la dérive,
- la sensibilité aux interférents physiques et chimiques (SO₂, NO_x, O₃, CO, BTX...).

Cette méthode est bien adaptée à l'évaluation des analyseurs ponctuels et de nombreux types d'appareils ont été évalués à l'INERIS dans le cadre du Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA). Depuis quelques années, l'intérêt s'est porté sur les systèmes de mesure à long trajet optique comme les spectromètres d'absorption différentielle DOAS. Leur évaluation dans l'esprit de la norme X20-300 a posé quelques problèmes méthodologiques qui sont actuellement résolus : une douzaine de réseaux sont maintenant équipés. Plus récemment encore, et en relation avec la mise en place d'un LIDAR Elight 510M dans la région lyonnaise, les pouvoirs publics ont demandé l'évaluation de ce système. Pour cette évaluation, et en raison même du principe de fonctionnement du LIDAR, le problème de conformité à la norme X20-300 s'est révélé encore plus ardu à résoudre qu'avec le DOAS.

La technique LIDAR consiste en effet à émettre des impulsions laser dans l'atmosphère et à analyser le rayonnement rétrodiffusé à la même longueur d'onde en utilisant les propriétés d'absorption et de diffusion de la lumière par les particules (diffusion de Mie) et par les molécules (diffusion de Rayleigh).

Un télescope coaxial à la source collecte la fraction du rayonnement rétrodiffusée dans l'angle solide sous lequel il voit le point émetteur de l'espace et la transmet à un photodétecteur qui

convertit les photons reçus en photoélectrons. Le signal électrique correspondant est en relation directe avec l'absorption du rayonnement par les molécules à analyser, en application de la loi de Beer-Lambert. En utilisant un laser pulsé, le signal est détecté en fonction du temps, donc de la distance et permet ainsi d'accéder par le calcul à la répartition des concentrations le long de l'axe de tir jusqu'à une limite définie comme la portée du LIDAR.

Dans la pratique, on utilise l'absorption différentielle DIAL. La source laser émet simultanément dans l'atmosphère à deux longueurs d'onde, l'une désignée par λ_{on} qui est fortement absorbée par le gaz considéré et l'autre par λ_{off} qui est faiblement absorbée, et on détermine par différence la concentration du polluant recherché en fonction de la distance.

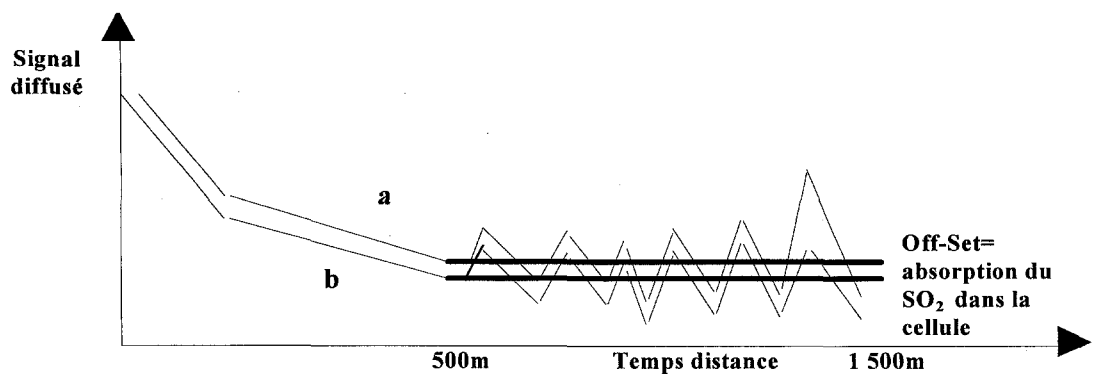
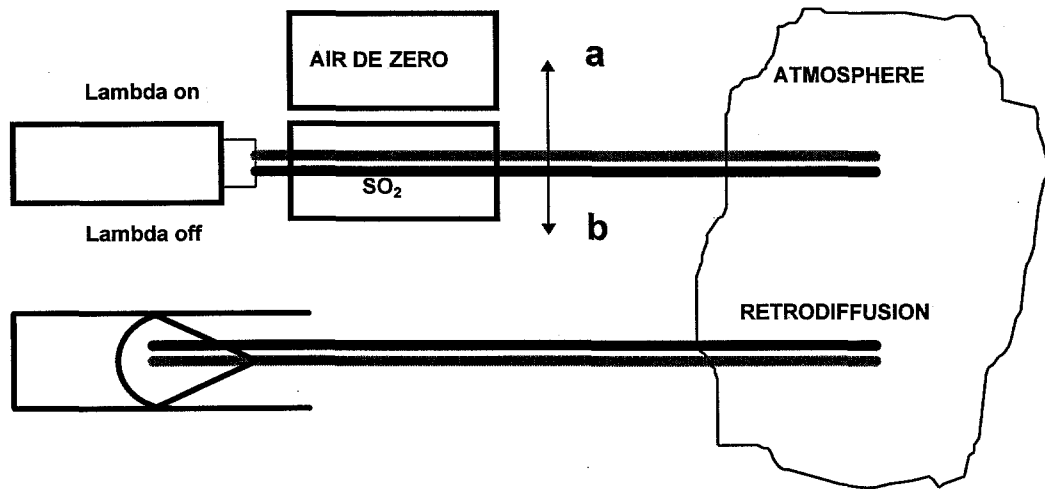
La description qui vient d'être faite de la technique LIDAR permet de concevoir que le calibrage et l'évaluation d'un tel système sont difficiles à réaliser avec les outils traditionnels. Certains pays comme l'Allemagne admettent que l'évaluation puisse se faire par rapport à des analyseurs de référence de type ponctuel ou à long trajet optique, comme le DOAS. Les conditions d'essai doivent alors être choisies pour assurer une bonne représentativité des résultats.

En France, la norme X20-300 stipule que la détermination des qualités métrologiques de l'appareil doit être réalisée par référence à un mélange de gaz par étalonnage. Ceci est difficilement praticable dans le cas des appareils à long trajet optique car il faudrait faire appel à des cellules de mesure très longues et difficiles à alimenter en gaz de manière homogène.

Pour pallier ces difficultés, on exploite la propriété caractéristique de l'absorption optique (Loi de Beer-Lambert) selon laquelle, pour une molécule absorbante donnée, le signal reçu est fonction du produit concentration par longueur : les caractéristiques de ces systèmes peuvent s'exprimer en **ppm.m** ou en **ppb.km**. On utilise donc une cellule de référence courte, placée sur le chemin optique de l'appareil, et dans laquelle la concentration est beaucoup plus élevée que dans l'atmosphère ambiante. On compare alors la concentration avec et sans la cellule (ou une autre cellule avec un gaz de zéro) pour déterminer la concentration de référence dans la cellule. Cette méthode permet de faire varier à volonté la concentration de gaz de référence et donc de déterminer toutes les caractéristiques de l'appareil citées plus haut. C'est la méthode adoptée par l'EPA aux Etats-Unis, le VDI-DIN en Allemagne, et l'INERIS en France pour les systèmes DOAS.

Le cas du LIDAR est particulier en raison de son mode de fonctionnement par rétrodiffusion. Il est exclu de placer une cellule de référence sur le faisceau LIDAR après son émission dans l'atmosphère : la réflexion sur les fenêtres d'entrée et de sortie de la cellule génère en effet un signal de retour près de 10^6 fois supérieur à celui de la rétrodiffusion de l'atmosphère. On insère donc la cellule de référence dans le circuit optique avant la sortie du faisceau dans l'atmosphère, entre la source laser et le premier miroir du télescope. On utilise deux cellules placées alternativement sur le trajet du faisceau, l'une alimentée en dynamique par des concentrations connues en gaz d'essai, l'autre, de mêmes caractéristiques alimentée en gaz de zéro. Le faisceau ayant traversé l'une ou l'autre cuve est émis ensuite à l'atmosphère puis récupéré et traité comme un signal atmosphérique. En toute rigueur, si cette procédure permet à l'évaluateur de vérifier les qualités du système en tant que photomètre d'absorption et la sensibilité de détection dans ces conditions, elle ne permet évidemment pas de vérifier la relation signal-concentration en utilisation normale sur trajet atmosphérique uniquement. Elle reste en outre soumise à l'influence des conditions atmosphériques et des concentrations

locales du polluant considéré dans l'atmosphère. Les essais doivent être réalisés de préférence dans des conditions atmosphériques stables et peu polluées.



II - Descriptif expérimental

Tous les essais ont été réalisés avec le système LIDAR Elight 510M.

Ce système mobile est basé sur un laser à impulsions Saphir Titane pompé par lampes, accordable en longueur d'onde et de haute énergie (300mJ/20Hz). Ce laser est ensuite doublé et triplé en fréquence afin d'obtenir des domaines d'accordabilité entre 250-300 nm et 375-400 nm. Le calibrage en longueur d'onde est effectué par une cellule optogalvanique à Argon. Les 2 longueurs d'onde nécessaires au système DIAL sont obtenues à l'aide d'un double oscillateur intracavité. Enfin ce dispositif est associé à un système de détection multicanal permettant l'acquisition quasi-simultanée de profils de concentration de plusieurs types de polluants tels NO₂, SO₂, O₃, benzène et toluène.

Les cellules alimentées en gaz d'essai et en gaz de zéro sont en quartz, de longueur 453 mm. Elles sont positionnées alternativement dans l'axe du faisceau au moyen de vérins pneumatiques commandés automatiquement.

Les performances du LIDAR ont été ainsi déterminées par la mise en oeuvre de séquences répétées d'un cycle de base (comme le préconise la norme NF X20-300) comportant :

- la mesure du gaz de « zéro » pendant ½ période du cycle,
- la mesure de la concentration C_i pendant la deuxième ½ période.

La génération dynamique du mélange SO_2 /air a été réalisée à l'aide d'un mélangeur à orifices soniques alimenté par une bouteille de mélange primaire de SO_2 /azote dans l'azote à haute concentration ($736 \text{ ppm} \pm 5 \% \text{ relatif}$) et par de l'air de complément séché, traité, épuré.

Les différentes concentrations obtenues ont varié entre 0,47 et 215,3 ppm.

La génération du mélange O_3 /air a été réalisée par dilution d'un mélange primaire hélium/ O_3 , préparé dans un double ozoneur à effluve, dans un débit d'air contrôlé. La valeur des concentrations en ozone a été vérifiée par analyseur spécifique à absorption UV (Environnement SA - modèle O_341M) ou, pour les valeurs supérieures à 20 ppm, par titration en phase gazeuse avec NO (norme NF 43-024). Les concentrations d'essai ont varié entre 20 et 120 ppm.

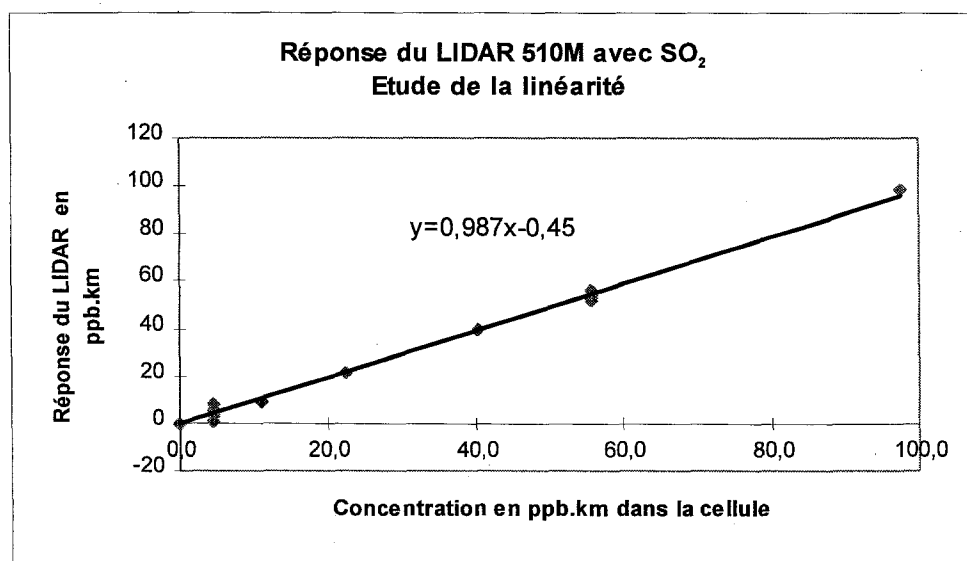
Pendant toutes les campagnes de mesures, il a été procédé en outre au suivi des conditions météorologiques : températures sous abri, hygrométrie, rayonnement solaire, pluviométrie, vitesse et direction du vent et visibilité de l'atmosphère.

III - Résultats

III.1. Essais avec SO_2

- *L'étude de la linéarité et du calibrage* a été réalisée en générant plusieurs niveaux de concentrations C_i . Pour chaque concentration C_i , on effectue j mesures X_{ij} . Parmi celles-ci figurent les deux concentrations (une faible et l'autre élevée) servant à l'établissement de la droite de calibrage.

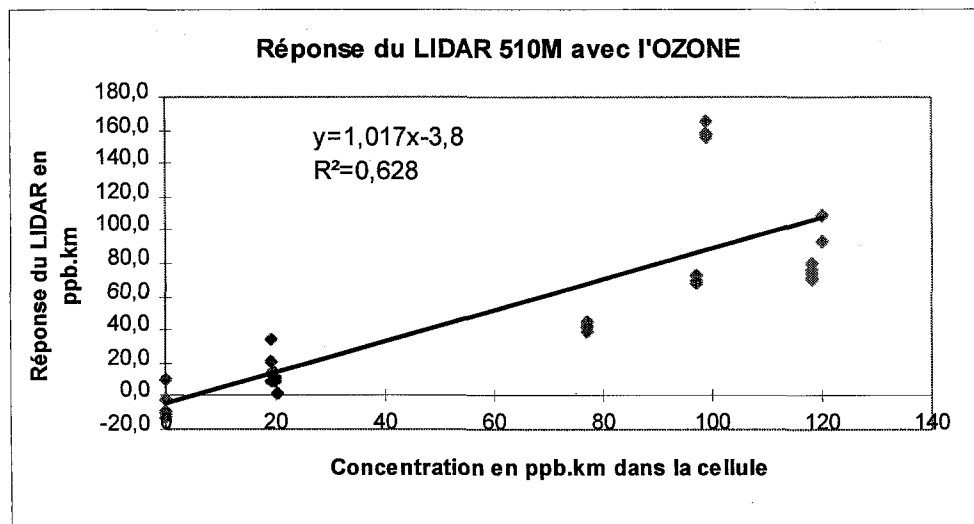
Les résultats sont présentés sur la figure 2 : ils sont très satisfaisants.



- *Les limites de détection* ont été déterminées à une concentration faible répétée 9 fois (limite = $2t\sigma$ avec t coefficient de Student) la limite de quantification est inférieure à 5 ppb.km (signal intégré sur 1 km, pendant 15 minutes).
- *Interférences* : La détermination des interférences se fait classiquement en alimentant les cellules de l'appareil réglé pour la mesure du SO_2 avec des mélanges contenant les gaz interférants. La mise en oeuvre de cette procédure n'a pas été possible en raison de la courte durée de mise à disposition du LIDAR. On a donc procédé de manière inverse en réglant l'appareil successivement pour chacun des gaz NO_2 , O_3 , benzène, toluène et en évaluant l'effet d'une exposition au SO_2 . Les résultats ont été conformes à ceux que permet de prévoir la théorie, sauf pour NO_2 .

III.2. Essais avec l'ozone

- *L'étude de la linéarité et du calibrage* a fait apparaître une assez forte dispersion des résultats voir figure 3. Une des hypothèses formulées pour expliquer cette dispersion est la formation de radicaux $[\text{OH}]$ due aux concentrations très élevées en ozone et à la présence de traces d'humidité résiduelle dans l'air de dilution. Le spectre d'absorption UV de $[\text{OH}]$ est en effet très fourni dans le domaine de longueurs d'onde correspondant à $\lambda_{\text{on}} \text{O}_3 = 282,4 \text{ nm}$ et à $\lambda_{\text{off}} \text{O}_3 = 286,3 \text{ nm}$ ce qui peut conduire à des absorptions parasites. Cette hypothèse sera vérifiée très prochainement.



- *Limite de quantification* : elle se situe en moyenne à 3,2 ppb.km pour une intégration sur 1 km pendant 15 minutes.
- *Interférences* : La même démarche que précédemment a été adoptée. L'appareil a été réglé successivement sur les canaux SO_2 , NO_2 , benzène, toluène et l'interférence de l'ozone a été déterminée. Comme avec SO_2 , les résultats sont en ordre de grandeur conformes à ceux que prévoit la théorie.

IV - Conclusions

La méthodologie proposée pour l'évaluation s'est révélée pertinente et fiable, au moins pour SO₂ mais elle n'a pu être validée dans le cas de l'ozone, en raison de difficultés à maîtriser les réactions parasites complexes qui peuvent se produire dans le flux gazeux chargé en ozone sous rayonnement UV. Il reste en outre à vérifier, dans le cadre d'une évaluation conforme à la norme, certaines caractéristiques comme la dérive ou les interférences.