

Notes techniques

CONTRÔLE DE LA CONCENTRATION EN PARTICULES À L'ÉMISSION DES ENGIN À MOTEUR DIESEL ÉQUIPÉS D'UN FILTRE À PARTICULES

La réglementation impose un contrôle des polluants émis par les engins mobiles non routiers Diesel. Une étude INRS a permis de comparer les performances d'appareils en laboratoire et en entreprise, d'étudier l'influence du conditionnement de l'aérosol échantillonné et de voir dans quelle mesure il était possible de se passer de ce conditionnement pour un contrôle plus simple du fonctionnement des filtres à particules (FAP) qui équipent ces engins.

DENIS BÉMER, HUBERT MONNIER, MARIE-THÉRÈSE LECLER
INRS, département Ingénierie des procédés

Les polluants émis par les engins mobiles non routiers (ENR) sont réglementés par la directive européenne 97/68/CE [1]¹ qui fixe une valeur limite d'émission des particules fines égale à 0,025 g/kWh pour les engins dont la puissance est supérieure à 19 kW, soit environ 5,55 mg/m³ [2]. L'ordonnance suisse de la protection de l'air (OPair) propose une limite se référant au nombre de particules plutôt qu'à la masse, afin de tenir compte des progrès en matière de motorisation qui ont conduit à réduire de manière importante la masse des particules émises, sans effet sur le nombre, du fait de la diminution dans le même temps de la taille des particules. Ainsi, les moteurs Diesel modernes produisent de très faibles masses de particules mais émettent approximativement la même quantité en nombre de nanoparticules que les moteurs Diesel d'ancienne génération [2]. Les études épidémiologiques indiquent une corrélation forte entre l'exposition aux particules ultrafines (PUF) et les effets sur la santé, en particulier avec les maladies cardio-vasculaires [3]. Or, il s'avère que la concentration en nombre de particules est un traceur plus pertinent de l'exposition aux PUF que la concentration en masse. Par ailleurs, la métrologie du nombre de particules est plus aisée que celle de la masse, et de nombreux appareils à lecture directe sont disponibles. Pour ces raisons, la législation semble s'orienter vers la détermination des émissions en nombre de particules. Par exemple, la limite d'émission proposée par l'OPair et reprise

dans un projet de règlement de la Commission européenne, avec une proposition d'étape V qui pourrait être effective fin 2016, serait de 10¹² part./kWh en particules de diamètre (de mobilité électrique) supérieur à 23 nm, ce qui correspond approximativement à une concentration de 2,5.10⁵ part./cm³ (Cf. Encadré 1). Convertie en nombre de particules, l'actuelle limite de 0,025 g/kWh fixée par la directive est égale à environ 10¹⁴ part./kWh, soit une valeur 100 fois supérieure à la limite en nombre proposée dans l'étape V. Actuellement, seul le recours à un filtre à particules (FAP) permet d'atteindre ces niveaux de concentration [4] (les FAP doivent être agréés par la certification VERT®). En France, seule la réglementation fixée par la directive européenne 97/68/CE¹ s'impose pour les ENR. Mais pour des raisons de santé au travail, les nouvelles limites en nombre et l'obligation d'équiper de FAP les engins évoluant en milieux souterrains ou confinés s'imposent. Rappelons que les fumées Diesel ont été classées comme cancérigène de classe I pour l'homme par le CIRC en 2012. Les filtres à particules peuvent être endommagés au cours de leur utilisation du fait de plusieurs facteurs – défaut de maintenance, mauvaise utilisation, vieillissement, chocs, etc. – conduisant à une augmentation plus ou moins importante de la concentration en particules à l'émission des moteurs des ENR. Les organismes de contrôle et de prévention, notamment les Carsat, souhaitent disposer d'un outil rapide et pratique permettant de mesurer cette

RÉSUMÉ

Actuellement, la limite d'émission en particules des engins non routiers à moteurs diesel est fixée par rapport à la masse des particules de suie. Pour de multiples raisons (métrologie, toxicologie, etc.), la législation s'oriente actuellement vers des limites définies par rapport

au nombre de particules solides émises. Différents appareils de mesure permettant de déterminer ces concentrations en nombre existent sur le marché. L'étude effectuée avait pour objectif de comparer les performances d'un certain nombre d'appareils,

d'étudier l'influence du conditionnement de l'aérosol échantillonné et de voir dans quelle mesure il était possible de se passer de ce conditionnement dans un objectif de simple contrôle du fonctionnement d'un FAP.

Testing the concentration of particles emitted by diesel vehicles equipped with particulate filters

Currently, the limit for particulate emission from diesel non-road mobile machinery is set relative to the mass of soot particles. For many reasons (metrology, toxicology, etc.), legislation is currently focusing on limits defined relative to the number

of solid particles emitted. Various measurement instruments making it possible to determine numerical concentrations are commercially available. The aim of the study conducted was to compare the performance of a certain number of

instruments, to study the influence of the conditioning of the sampled aerosol, and to see to what extent it is possible to do without that conditioning with the aim of merely testing operation of a diesel particulate filter (DPF).

concentration. Actuellement, la mesure par prélèvement sur filtre pour la détermination des concentrations en carbone élémentaire et organique constitue la référence [5], mais la mise en œuvre de cette méthode est fastidieuse et les résultats ne sont obtenus qu'après des délais conséquents. C'est pourquoi, actuellement, les efforts sont dirigés vers la mesure du nombre de particules.

Mais la mesure de la concentration en nombre de particules de suie à l'émission d'un moteur est une opération complexe en raison de la présence de nanoparticules produites notamment par condensa-

tion des vapeurs. De plus, ce phénomène est accentué en présence d'un FAP. En effet, en l'absence de particules solides (sues) à l'aval d'un FAP performant, les vapeurs (hydrocarbures, eau, huile, etc.) sont en effet susceptibles de condenser sans le support de ces particules, pour donner naissance à des nanoparticules liquides dont la taille est inférieure à 20 nm (phénomène de nucléation homogène). Ces particules, si elles ne sont pas éliminées, seront alors comptabilisées au même titre que les particules solides de carbone ou autres [6], car les appareils utilisés ne font pas la distinction entre particules liquides et

ENCADRÉ 1

ÉVOLUTION DE LA DIRECTIVE EUROPÉENNE 97/68/CE - PROJET D'ÉTAPE V POUR LES ENGIN NON ROUTIERS MOBILES [14]

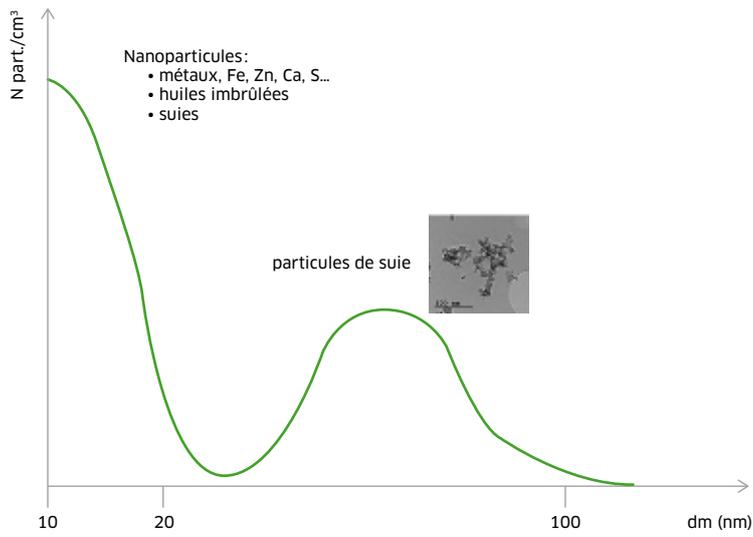
Ce projet prévoit une diminution de l'émission de particules (en masse) de 0,025 g/kWh à 0,015 g/kWh des engins de puissance > 19 kW et surtout une limitation, pour la première fois vis-à-vis du nombre, fixée à 10¹²/kWh particules de diamètre ≥ 23 nm. Cette dernière disposition semble plus compliquée à imposer, car elle n'a, semble-t-il, pas l'adhésion au plan international des États-Unis et du Japon.

CATÉGORIE	ALLUMAGE	PUISSANCE kW	DATE	CO	HC	NO _x	PM	PN
				g/kWh				/kWh
NRE-v/c-1	C ^b	P < 8	2019	8.00	7.50 ^a		0.40	-
NRE-v/c-2	C	8 ≤ P < 19	2019	6.60	7.50 ^a		0.40	-
NRE-v/c-3	C	19 ≤ P < 37	2019	5.00	4.70 ^a		0.015	1×10 ¹²
NRE-v/c-4	C	37 ≤ P < 56	2019	5.00	4.70 ^a		0.015	1×10 ¹²
NRE-v/c-5	tous	56 ≤ P < 130	2020	5.00	0.19	0.40	0.015	1×10 ¹²
NRE-v/c-6	tous	130 ≤ P ≤ 560	2019	3.50	0.19	0.40	0.015	1×10 ¹²
NRE-v/c-7	tous	P > 560	2019	3.50	0.19	3.50	0.045	-

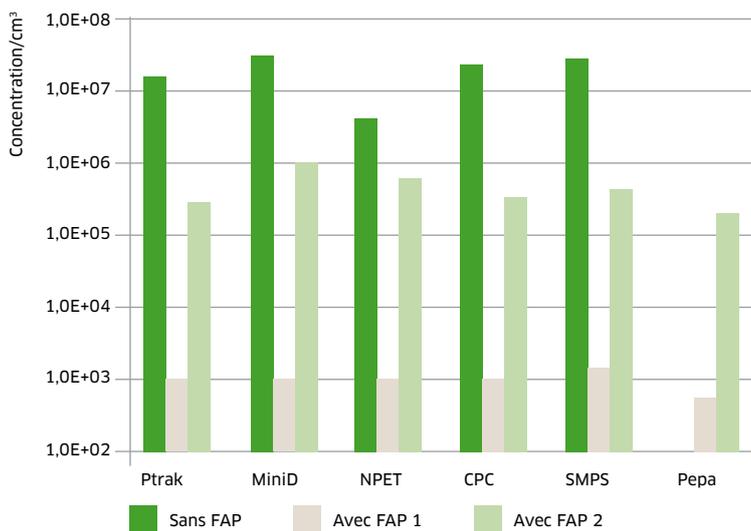
^aHC+NO_x, ^bC: allumage par compression (Diesel).

NO_x = NO + NO₂, PM : masse de particules, PN : nombre de particules.





↑ FIGURE 1 Distribution granulométrique schématique des particules non volatiles.



↑ FIGURE 2 Résultats des concentrations en nombre dans les trois configurations testées : sans FAP, avec FAP 1, avec FAP 2 au régime moteur ralenti. Les appareils P-Trak et miniDisc ne disposent pas de conditionnement de l'air échantillonné.

TABLEAU 1 → Caractéristiques des appareils utilisés.

MODÈLE	PRINCIPE EXPLOITÉ	CONDITIONNEMENT DE L'AÉROSOL	DOMAINE D'ANALYSE
miniDisc Testo®	Charge électrique des particules	Non	$10^2 \leq C_n \leq 2.10^6 / \text{cm}^3$ $10 \leq D_m \leq 500 \text{ nm}$
P-Trak TSI®	Compteur de noyaux de condensation (CNC)	Non	$C_n \leq 5.10^5 / \text{cm}^3$ $20 \text{ nm} \leq d_p \leq 1 \mu\text{m}$
NPET 3795 TSI®	CNC	Oui Oxydation catalysée	$C_n \leq 5.10^6 / \text{cm}^3$ $23 \text{ nm} \leq d_p \leq 1 \mu\text{m}$
CPC 3790 TSI®	CNC	Non	$C_n \leq 10^4 / \text{cm}^3$ $23 \text{ nm} \leq d_p \leq 3 \mu\text{m}$
CPC 3007 TSI®	CNC	Non	$C_n \leq 10^5 / \text{cm}^3$ $10 \text{ nm} \leq d_p \leq 1 \mu\text{m}$
SMPS 3080 TSI®	Granulométrie (mobilité électrique des particules) + CNC	Non	$C_n \leq 10^4 / \text{cm}^3$ Distribution granulométrique $10 \text{ nm} \leq d_p \leq 1 \mu\text{m}$
PEPA Testo®	Charge électrique des particules	Oui Dilution et chauffage	$C_n \leq 10^7 / \text{cm}^3$ $10 \text{ nm} \leq d_p \leq 300 \text{ nm}$
SMPS 5400 Grimm®	Granulométrie (mobilité électrique des particules) + CNC	Non	$C_n \leq 10^6 / \text{cm}^3$ Distribution granulométrique $11 \text{ nm} \leq d_p \leq 1 \mu\text{m}$

solides. Pour pallier cela, différentes techniques sont proposées: thermo-dilution, oxydation catalysée (*Catalytic Stripper*), chauffage suivi d'une adsorption gaz/solide, etc. [7]. La méthode de référence proposée dans le programme PMP (*Particle Measuring Program*) [8] consiste à mesurer la concentration en particules non volatiles après conditionnement de l'aérosol. Ce dernier consiste en une première dilution à chaud, puis une deuxième étape de chauffage, suivie d'une deuxième dilution. Certains appareils du commerce possèdent leur propre conditionnement de l'aérosol, alors que d'autres, destinés aux mesures en ambiance, n'en possèdent pas.

Néanmoins, un mode de nanoparticules non volatiles peut subsister malgré le conditionnement de l'aérosol échantillonné (Cf. Figure 1). Ces nanoparticules ont plusieurs origines: cendres métalliques provenant des huiles et des additifs du carburant, huiles imbrûlées [9], suies, composés soufrés, etc. Comme la présence de ce mode de nanoparticules, plus fréquemment observé au régime ralenti des moteurs, est aléatoire, il a été décidé de ne mesurer que les particules solides de carbone agglomérées. C'est pourquoi les limites des émissions en nombre sont définies pour une taille de 23 nm. Mais ce dernier point est actuellement discuté, car, dans certains cas, le nombre des particules non volatiles sub-23nm excède très largement celui des particules agglomérées > 23 nm [10]. Or, ce sont précisément ces nanoparticules, possédant une plus grande surface spécifique, qui sont impliquées dans les mécanismes d'inflammation des tissus pulmonaires [11].

L'étude effectuée par l'INRS avait pour but de comparer les performances de différents appareils de mesure de la concentration en nombre de particules à l'émission des engins. L'influence du conditionnement de l'aérosol (avec thermo-dilution ou dilution à température ambiante) sur la mesure

de la concentration a été étudiée afin d'examiner dans quelle mesure il était possible de se passer de ce conditionnement dans un objectif de simple contrôle du fonctionnement d'un FAP et de détection des éventuels dysfonctionnements.

Des essais ont été conduits en recourant à un banc à rouleaux du laboratoire de contrôle des gaz d'échappement (AFHB) de la Haute École spécialisée bernoise à Bienne (Suisse) et un banc d'essai de l'INRS disposant d'un groupe électrogène Diesel. Différentes configurations ont été testées en laboratoire: régimes moteur, émissions avec et sans FAP, mesures avec et sans conditionnement de l'aérosol. Des mesures à l'émission ont également été effectuées dans un chantier de travaux publics en souterrain avec des engins équipés de filtres à particules (Cf. Figure 3).

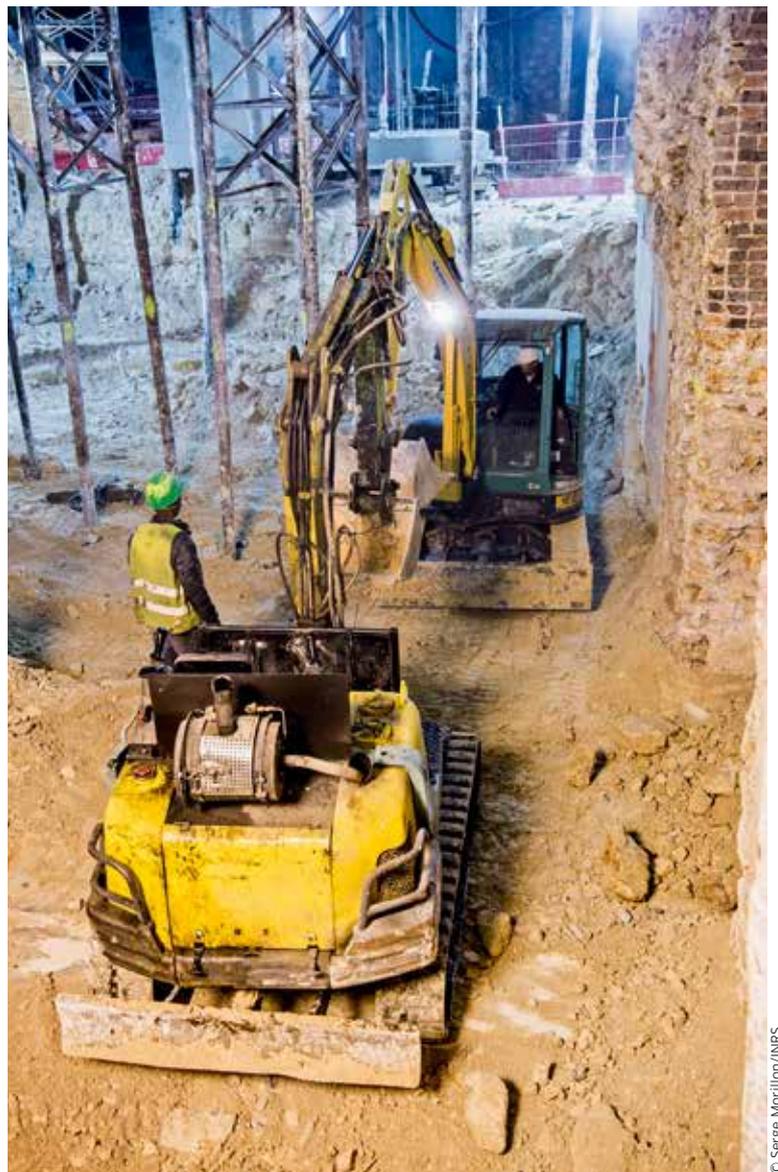
Essais réalisés en laboratoire

Les appareils suivants ont été testés au laboratoire AFHB: P-Trak, NPET 3795, CPC 3790 (TSI®), miniDisc, PEPA (Testo®). La distribution granulométrique de référence était donnée par un analyseur SMPS 3080 (TSI®). Les caractéristiques de ces appareils sont données dans le tableau 1. Le SMPS et le CPC analysent l'aérosol après conditionnement par un système de thermo-dilution MD19-2E/ASET 15-1 (Testo®). Les appareils NPET et PEPA disposent de leur propre conditionnement. Seuls les appareils P-Trak et mini-Disc ne disposaient pas de conditionnement de l'aérosol échantillonné.

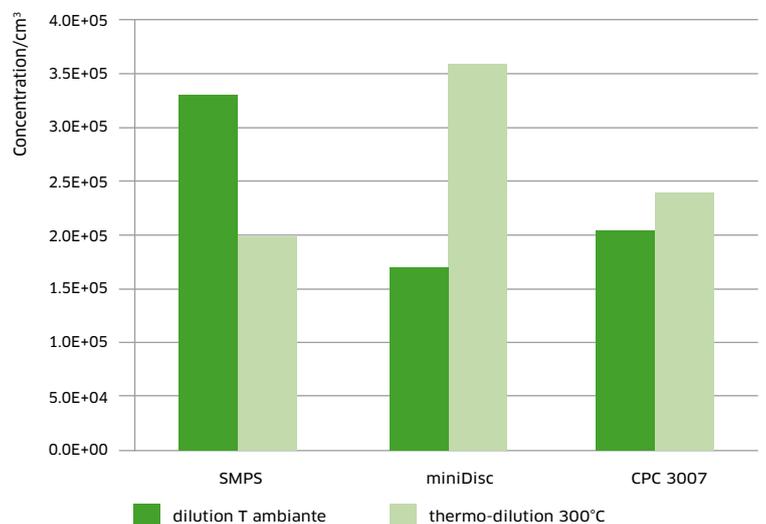
La sonde PPS (Pegasor®), reposant sur une mesure électrique des particules, serait *a priori* aussi bien adaptée à ce type de caractérisation, mais n'a pu être testée dans le cadre de cette étude [12]. L'analyseur NanoMet3 (Testo®), fondé sur le même principe de fonctionnement que la sonde PEPA, est également un appareil permettant la mesure des particules solides à l'émission. Un photomètre (DustTrak 8533, TSI) a également été testé, mais sa sensibilité est insuffisante dans le domaine d'intérêt ($C_n < 10^6$ part./cm³) et les essais n'ont pas été poursuivis avec cet appareil. Différents FAP ont été testés: un FAP à haute efficacité de filtration (FAP 1, en céramique nid d'abeille) et deux FAP de moyenne efficacité (un filtre dit « ouvert » dans la mesure où seule une fraction du flux gazeux traverse le média filtrant et un filtre plissé constitué d'un média en fibres de verre).

La figure 2 présente les résultats des mesures réalisées au laboratoire AFHB, à l'émission d'une voiture Diesel (Toyota, Camry), sans FAP et avec deux types de FAP aux performances très différentes (FAP 1 et 2).

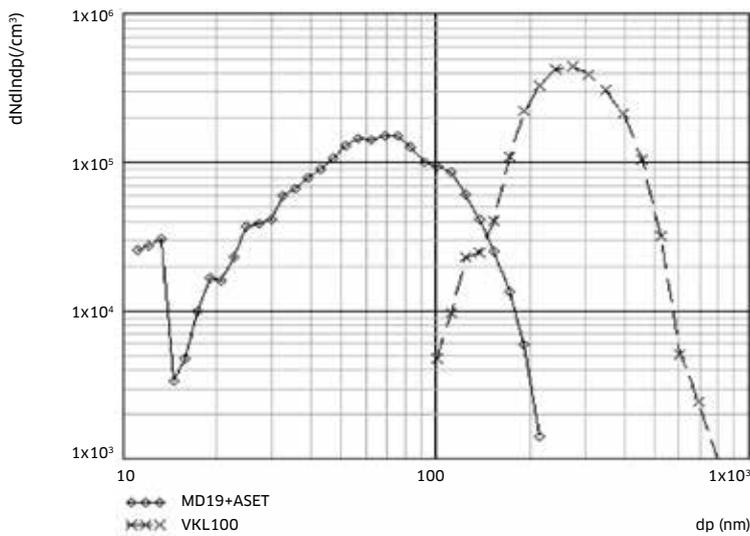
Les résultats entre appareils sont assez homogènes, avec néanmoins des valeurs sensiblement inférieures obtenues avec l'appareil Pepa. L'absence de conditionnement de l'air échantillonné avec certains appareils (P-Trak et miniDisc) ne semble pas



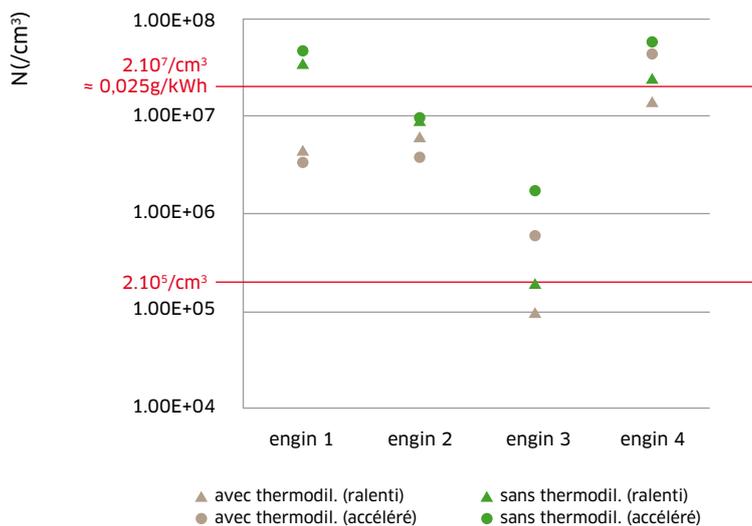
↑ FIGURE 3 Engins équipés de FAP dans un chantier souterrain.



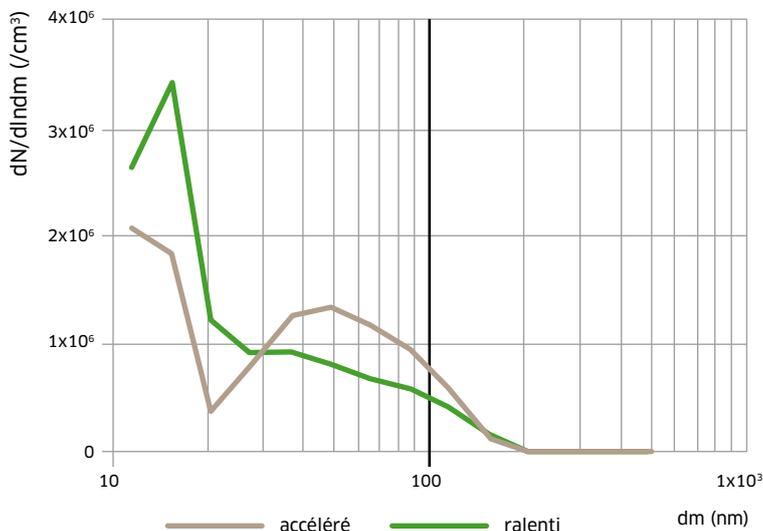
↑ FIGURE 4 Concentrations mesurées avec thermo-dilution et dilution à température ambiante au régime moteur 2 kW, avec FAP. Banc INRS.



↑ FIGURE 5 Distributions granulométriques mesurées au moyen du SMPS avec thermo-dilution (MD19+ASET) et sans (VKL100) - avec FAP, au régime moteur correspondant à une puissance de 2 kW.



↑ FIGURE 6 Concentrations mesurées à l'émission des quatre engins avec le miniDisc, avec et sans conditionnement par thermo-dilution de l'aérosol, aux deux régimes moteur.



↑ FIGURE 7 Distributions granulométriques en nombre établies à l'émission de l'engin 1, avec thermo-dilution, aux régimes ralenti et accéléré.

affecter de manière notable la concentration en nombre. Notons les concentrations très faibles relevées à l'aval du filtre 1 et ainsi la possibilité offerte par une filtration performante d'abaisser les émissions de particules bien en deçà des recommandations ($2,5 \cdot 10^5$ part./cm³).

En parallèle de ce travail, les analyseurs miniDisc et CPC 3007 (TSI®) ont été testés sur le banc d'essai de l'INRS. Un SMPS 5400 (Grimm®) servait de référence pour la détermination de la distribution granulométrique en nombre. Ces trois appareils possèdent la même limite inférieure de détection de la taille des particules soit ≈ 10 nm (Cf. Tableau 1). La figure 4 donne les résultats des mesures effectuées à l'émission d'un groupe électrogène Diesel (ITC Power 5) équipé du FAP 3, dans deux configurations d'échantillonnage: avec thermo-dilution et dilution à température ambiante (diluteur Palas® VKL100).

Là encore, toujours dans un objectif d'utilisation de ces appareils pour la détection de dysfonctionnement d'un FAP, nous pouvons considérer que les différences de concentrations observées entre appareils, avec le recours ou non à la thermo-dilution, ne sont pas significatives. En revanche, si le conditionnement de l'air échantillonné ne semble pas influencer de manière notable sur les concentrations, les distributions granulométriques sont très différentes, comme le montrent les résultats obtenus avec le SMPS 5400 (Cf. Figure 5). Le grossissement des particules observé en l'absence de traitement thermique (dilution à température ambiante VKL100) est certainement causé par la condensation des composés volatiles sur les particules de suie.

Mesures sur le terrain

Un appareil miniDisc et un analyseur Nanoscan (TSI®) ont été retenus pour effectuer des mesures à l'émission de quatre engins de chantier équipés de quatre FAP différents évoluant en souterrain (Cf. Figure 6). Tous les FAP étaient certifiés VERT®. Les mesures ont été effectuées après un conditionnement de l'aérosol échantillonné par thermo-dilution (MD19-3E/ASET15-1) et sans conditionnement, par simple dilution à température ambiante (Grimm® 1159), à deux régimes moteur (ralenti et en accélération libre). L'analyseur Nanoscan est un granulomètre permettant de déterminer la distribution granulométrique des particules en 12 canaux répartis de 11 nm à 365 nm au débit de 0,8 l/min (une mesure par min.). Les mesures effectuées avec le miniDisc sont représentées sur la figure 6. Les concentrations en particules peuvent être comparées aux deux limites d'émission de $2 \cdot 10^5$ part./cm³ et 0,025 g/kWh, soit $\approx 2 \cdot 10^7$ part./cm³, compte tenu de la correspondance nombre/masse trouvée en laboratoire ($1 \text{ mg/m}^3 \rightarrow 4,5 \cdot 10^6$ part./cm³, particules non volatiles de $dp \geq 23$ nm) et confirmée par d'autres travaux [13].

Remarque: les concentrations données par le mini-

Disc sont légèrement supérieures aux concentrations des particules de $dp \geq 23$ nm, compte tenu de sa limite de détection de la taille des particules plus basse, égale à 10 nm.

Les résultats montrent le faible impact de la thermodilution sur les concentrations, à l'exception de l'engin 1, pour lequel les concentrations mesurées en l'absence de conditionnement de l'air sont très supérieures à celles déterminées avec conditionnement. Le FAP de l'engin 4 est certainement défectueux (une fissuration de la céramique en est peut-être la cause), car les concentrations relevées sont proches de celles normalement trouvées à l'émission d'un engin sans filtre. Les filtres des engins 1 et 2 permettent d'abaisser significativement les concentrations de particules, mais seul le filtre de l'engin 3 permet réellement d'atteindre la limite de 2.10^5 part./cm³.

La figure 7 représente la distribution granulométrique en nombre des particules à l'émission de l'engin 1 déterminée au moyen du Nanoscan après thermodilution du gaz échantillonné. On peut noter la présence d'un pic de nanoparticules centré à 15 nm, présent malgré le conditionnement thermique (ce pic est également observé pour l'engin 2). En revanche, il n'est pas présent à l'émission des engins 3 et 4, dont les distributions ne sont pas données. Ces résultats confirment que les mesures effectuées à partir d'un diamètre de 23 nm sous-estiment fortement la concentration en particules non volatiles dans certains cas.

Conclusion

Les essais réalisés ont mis en évidence l'homogénéité des résultats des mesures des concentrations en nombre de particules, déterminées au moyen

des différents appareils, dans les différentes configurations testées. Les concentrations moyennes ne semblent pas particulièrement affectées par l'absence de conditionnement de l'aérosol échantillonné, sauf dans un cas (mesure sur un engin de chantier) où les concentrations mesurées sans conditionnement étaient nettement supérieures à celles déterminées après conditionnement par thermodilution. Le recours à des appareils disposant d'un conditionnement de l'aérosol échantillonné (par thermodilution par ex.) semble donc indispensable dans un objectif de contrôle visant à délivrer une valeur de concentration en nombre à l'émission.

Mais le contrôle du bon fonctionnement d'un FAP ne nécessite pas forcément la mesure de la concentration en nombre, dont on voit les contraintes. Une solution prometteuse consistant à mesurer la concentration en masse de carbone-suie au moyen d'un aéthalomètre portable est actuellement étudiée. Cet appareil effectuant une mesure spécifique du carbone-suie permettrait de s'affranchir de la contrainte du conditionnement de l'aérosol échantillonné, nécessaire à la détermination de la concentration en nombre. ●

1. Modifiée en 2004 par la directive 2012/46/UE [1]. Article R. 4222-24 du Code du travail.

2. Une énergie thermique de 1 kWh produite par un moteur Diesel émet environ 4,5 m³ de gaz d'échappement.

Remerciements

Tous nos remerciements à Pierre Comte du Laboratoire de contrôle des gaz d'échappement à Bienne ainsi qu'à Éric Mazillier, Jean-Pierre Depay et Frédéric Mateus de la Cramif.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Directive 2012/46/UE de la Commission du 6 décembre 2012 portant modification de la directive 97/68/CE relative aux mesures contre les émissions de gaz et de particules polluants provenant des moteurs à combustion interne destinés aux engins mobiles non routiers. Parue au Journal officiel de la Communauté européenne.

[2] CZERWINSKI J. Poussières fines ou nanoparticules. De quoi s'agit-il? Communication de la Haute École spécialisée bernoise, Laboratoire AFHB, Bienne, 2005.

[3] KATSOUYANNI K. Acute (or short-term) human health effects of particulate air pollution: epidemiologic evidence for the relevance of UFP, ETH congress (Zürich), 2012.

[4] MAYER A. Legislation and guideline supporting DPF retrofit worldwide in Particle Retrofit for all Diesel Engines, Haus der Technik, expert/verlag, Renningen, 2008.

[5] CAVALLI F., VIANA M., YTTRI K.E. ET AL.

Toward a standardized thermo-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon. The EUSAAR protocol, Atmos. Meas. Tech., 3, 79-89, 2010.

[6] KASPER M. Particle sampling and measurement for type approval and field control in Particle Retrofit for all Diesel Engines, Haus der Technik, expert/verlag, Renningen, 2008.

[7] SWANSON J., KITTELSON D. Evaluation of thermal denuder and catalytic stripper methods for solid particle measurements, J. of Aerosol Science, 41, 1113-1122, 2010.

[8] ANDERSON J., GIECHASKIEL B. ET AL. Particle measuring program light-duty inter-laboratory correlation, Exercise (ILCE-LD), Final Report, EUR 22775 EN, 2007.

[9] KHALEK I. A. Characterization of particle size, number and mass emissions from a diesel powered generator, Proceedings of ICEF 2006, ASME Internal combustion Engine Division 2006, Nov. 2006, Sacramento, USA.

[10] ZHENG Z., JOHNSON K.C., LIU Z. ET AL. Investigation of solid particle number measurement: Existence and nature of sub-23 nm particles under PMP methodology, J. of Aerosol Science, 42, 883-897, 2011.

[11] STOEGER T., TAKENAKA S., FRANKENBERGER B. ET AL. Deducing in vivo toxicity of combustion-derived nanoparticles from a cell-free oxidative potency assay and metabolic activation of organic compounds, Environ. Health Perspect., 117(1), 54-60, 2009.

[12] MARICQ M.M. Monitoring motor vehicle PM emissions: an evaluation of three portable low-cost aerosol instruments, Aerosol Sci. Technol. 47,564-573, 2013.

[13] KITTELSON D., PATWARDHAN U. ET AL. Real-time measurements of metallic ash emissions from engines, 17th ETH Conference, Zürich, 2013.

[14] European emission standards for engines used in new non-road mobile machinery. www.dieselnet.com/standards/eu/nonroad.php, 2016.