



Calibrage et évaluation de systèmes LIDAR

Calibrating and valuation of LIDAR systems

Tamara MÉNARD, Eric VINDIMIAN, Yves GODET, Michel NOMINE*

Derk WEIDAUER, Matthias ULBRICHT**

Emeric FREJAFON, Patrick RAMBALDI, Mathilde DOUARD, Jean-Pierre WOLF***

RÉSUMÉ

Les caractéristiques métrologiques des appareils de surveillance de la pollution atmosphérique font l'objet d'une évaluation selon la norme NF X20-300. L'application de cette norme aux appareils de type Lidar pose des problèmes méthodologiques particuliers pour lesquels une solution adaptée a pu être trouvée. L'évaluation du Lidar Elight 510 M a ainsi pu être réalisée avec SO₂ comme polluant. Les résultats ont été satisfaisants.

ABSTRACT

Metrological characteristics of atmospheric pollution monitoring devices are evaluated according to the NF X20-300 standard. The application of this standard to Lidar systems raised specific method-related problems that have been appropriately solved. The evaluation of the Elight 510 M Lidar has been performed using SO₂ as the pollutant. Good results were obtained.

Introduction

L'évaluation des appareils de mesures des polluants atmosphériques s'appuie sur la norme AFNOR NFX 20-300 qui définit la manière de déterminer les principales caractéristiques métrologiques des appareils, 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...).

De nombreux types d'analyseurs ponctuels ont ainsi été évalués à l'INERIS dans le cadre du Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA). L'intérêt s'est porté depuis quelques années sur les systèmes de mesure à long trajet optique. Les premiers appareils concernés et évalués à l'INERIS ont été les DOAS (1). Leur évaluation dans l'esprit de la norme X 20-300 a posé quelques problèmes méthodologiques actuellement résolus : deux types d'appareils ont été testés en 1997 avant mise en service dans les réseaux. La perspective d'implantation d'un LIDAR dans le réseau

COPARLY (2) a conduit les pouvoirs publics à demander l'évaluation d'un tel système, évaluation pour laquelle le problème de conformité à la norme X 20-300 s'est révélé encore plus ardu à résoudre qu'avec le DOAS.

Cet article, après avoir rappelé les caractéristiques de la mesure LIDAR, présente l'approche retenue pour l'évaluation et donne les résultats obtenus dans le cadre d'une opération consacrée à la mesure de SO₂.

1. Principe du LIDAR DIAL

Lorsqu'un laser traverse l'atmosphère, il est diffusé dans toutes les directions par les gaz et les particules présents dans l'air. Cette diffusion est essentiellement de deux types : Rayleigh sur les molécules telles que N₂ et O₂, et Mie sur les aérosols (poussières, gouttelettes d'eau). Une partie de la lumière étant réémise vers l'arrière, on peut mesurer l'amplitude de cette diffusion en fonction de la distance. Pour ce faire (figure 1) un télescope augmentant l'angle solide de réception est placé coaxialement au laser émetteur, et collecte le signal rétrodiffusé. Il focalise ensuite la lumière sur un photomultiplicateur, au travers d'un filtre spectral adapté à la longueur d'onde du laser. En utilisant un laser pulsé, le signal peut être détecté en fonction du temps, c'est-à-dire en

* INERIS Parc Technologique ALATA - B.P. n° 2 - F - 60550 Verneuil-en-Halatte.

** Elight Laser Systems GmbH Warthestrasse 21 - D - 14513 Teltow / Berlin.

*** LASIM (UMR 5579) Université Claude Bernard Lyon 1 - 43 Bd du 11 novembre 1918 - F - 69622 Villeurbanne Cedex.

(1) DOAS = Spectromètre d'absorption optique différentielle.

(2) COPARLY = Comité de coordination pour le contrôle de la pollution atmosphérique en région lyonnaise.

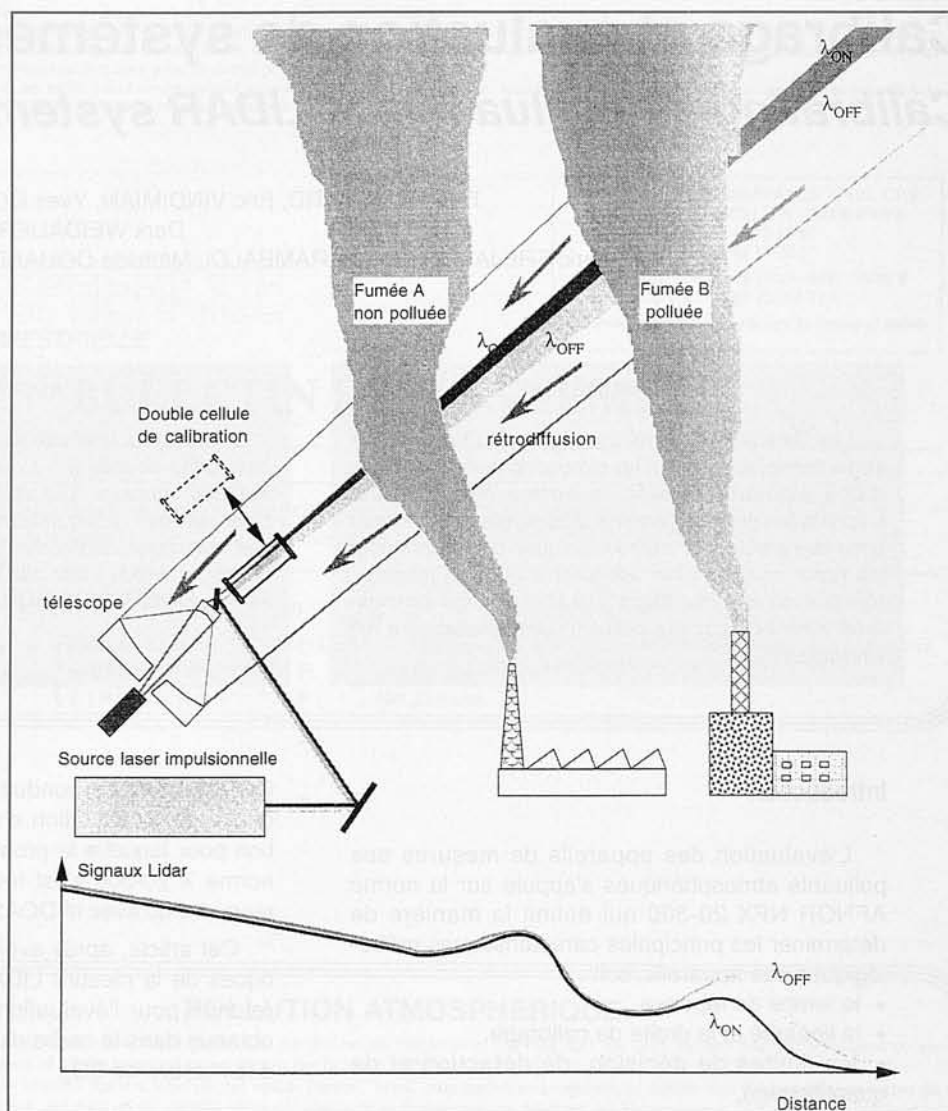


Figure 1.
Principe de fonctionnement du LIDAR.
Principle of operation of a Lidar dial system.

fonction de la distance R ($R = ct/2$, où c est la vitesse de la lumière). C'est le principe du LIDAR (Light Detection And Ranging) [1], qui porte son nom par analogie avec le RADAR (Radiowaves Detection And Ranging) mais qui utilise la lumière au lieu des radiofréquences.

Plus précisément, l'intensité lumineuse $M(R, \lambda)$ rétrodiffusée par une couche d'épaisseur ΔR à une distance R est donnée dans le cas de la simple diffusion (chaque photon n'est diffusé que par une seule particule) par :

$$M(R, \lambda) = M_0(\lambda) \frac{A_0}{R^2} \beta(R, \lambda) \Delta R \zeta(R, \lambda) \exp \left\{ -2 \int_0^R \alpha(\lambda, R) dR \right\}$$

où $M_0(\lambda)$ est l'intensité émise/impulsion par le laser, à la longueur d'onde λ ,

A_0 la surface de détection (généralement l'aire du miroir primaire du télescope),

$\beta(R, \lambda)$ le coefficient volumique de rétrodiffusion, $\zeta(R, \lambda)$ l'efficacité de détection, $\alpha(\lambda, R)$ le coefficient d'extinction atmosphérique total (volumique).

Considérons à présent chacun de ces termes séparément, et leur effet respectif sur le signal reçu :

- 1) Remarquons tout d'abord que l'intensité du signal rétrodiffusé décroît globalement avec le carré de la distance en raison de l'angle solide A_0/R^2 formé par l'aire du détecteur.
- 2) La dépendance du signal vis-à-vis de la concentration des aérosols est incluse dans le coefficient volumique de rétrodiffusion.

$$\beta = \beta_{Ray} + \beta_{Mie} = \frac{\pi^2 (n_{Ray}^2 - 1)^2}{N_{Ray} \lambda^4} + \int_0^\infty \frac{d\sigma_{Mie}}{d\Omega} (\theta = \pi) N_{Mie}(a) da$$

(où les indices Ray et Mie réfèrent à Rayleigh et Mie. n_{Ray} est l'indice de réfraction de l'air, N_{Ray} le nombre de molécules dans l'air par cm^3 , et N_{Mie} (a) le nombre de particules aérosols de rayon a par cm^3).

3) L'épaisseur de la couche diffusante ΔR correspond à la résolution du système, essentiellement limitée par la durée τ de l'impulsion laser ($\Delta R = c\tau/2$, comprise en général entre 1 et 10 mètres) et la fréquence d'échantillonnage du système d'acquisition (10 MHz $\rightarrow$ 15 mètres, 100 MHz $\rightarrow$ 1,5 mètre).

4) L'efficacité de détection $\zeta(R, \lambda)$ prend en compte tous les facteurs géométriques et optiques du système de réception. On peut généralement séparer $\zeta(R, \lambda)$ en deux facteurs, l'un dépendant de la géométrie $\zeta(R)$ et l'autre des caractéristiques spectrales $\zeta(\lambda)$ induites par le monochromateur ou les filtres interférentiels utilisés dans le montage. On a alors $\zeta(R, \lambda) = \zeta(R) \zeta(\lambda)$.

$\zeta(R)$ représente essentiellement le facteur de recouvrement entre le champ de vision de l'optique de réception et le champ illuminé par le laser.

5) Le facteur $\exp \{-2 \int \alpha(\lambda, R) dR\}$ représente l'atténuation que subit le laser jusqu'à la distance R , par la loi de Beer. Cette atténuation est causée par deux phénomènes différents : la diffusion Rayleigh et Mie (ce qui est diffusé n'est en effet pas transmis) et l'absorption par les diffé-

rentes molécules présentes dans l'atmosphère. On a donc $\alpha = \alpha_{Ray} + \alpha_{Mie} + \alpha_A$ où α_{Ray} est l'atténuation due à la diffusion Rayleigh, α_{Mie} à la diffusion Mie et α_A l'absorption moléculaire. Le terme le plus intéressant dans notre cas est le terme d'absorption spécifique $\alpha_A = \sum N_i \sigma_i(\lambda)$, où N_i est la concentration (nb/cm^3) des molécules de l'espèce i dans l'atmosphère et $\sigma_i(\lambda)$, sa section efficace d'absorption à la longueur d'onde λ du laser, car il permettra de mesurer les concentrations de polluants d'une manière sélective par absorption différentielle (DIAL, Differential Absorption Lidar) [2].

En effet, pour mesurer spécifiquement la concentration en polluants, la spectroscopie optique d'absorption représente un outil très efficace. La figure 2 représente, par exemple, le spectre d'absorption du SO_2 [8]. On pourra ainsi utiliser les différences de section efficace d'absorption du polluant (deux longueurs d'onde différentes par exemple) pour en déduire sa concentration [9].

Supposons donc (fig. 1) que deux impulsions laser soient envoyées simultanément dans l'atmosphère, l'une dont la longueur d'onde est fortement absorbée par le polluant considéré (p. ex. 300.05 nm pour le SO_2) dite λ_{on} et l'autre beaucoup plus faiblement (300.95 nm pour le SO_2) dite λ_{off} . Si λ_{on} et λ_{off} sont suffisamment proches (ce qui est le cas grâce aux résonances marquées de la bande d'absorption,

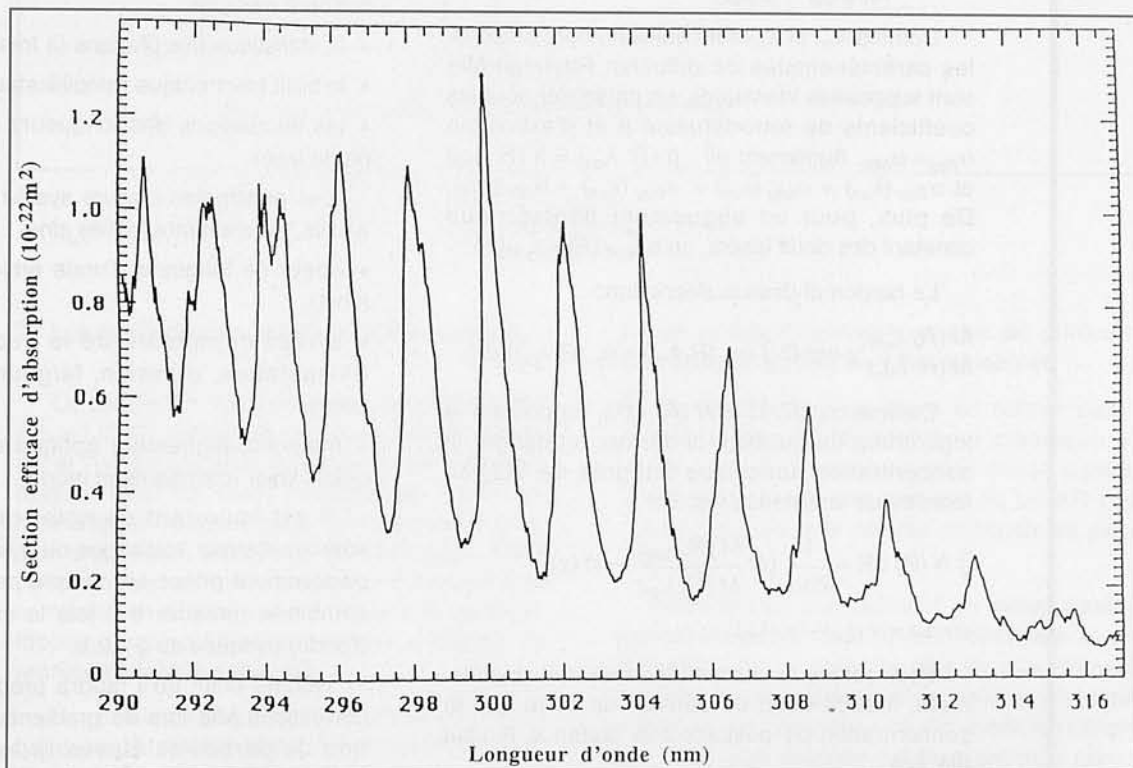


Figure 2.
Spectre d'absorption du SO_2 .
SO₂ Absorption spectrum.

cf. figure 2) les propriétés de rétrodiffusion aux deux longueurs d'onde sont identiques.

$[\beta(R, \lambda_{on}) = \beta(R, \lambda_{off})]$. Ainsi, le panache émis par la première cheminée (A dans la figure 1) et qui ne contient pas de SO_2 provoque la même augmentation du signal $M(R, \lambda)$ (car la concentration d'aérosols augmente) pour les deux impulsions [11]. Par contre, la deuxième cheminée (B), qui émet du SO_2 , provoquera une absorption forte du signal rétrodiffusé de longueur d'onde λ_{on} et pratiquement pas de celui de longueur d'onde λ_{off} . De cette différence, on obtient par la loi de Beer la concentration de SO_2 d'une manière spécifique, en fonction de la distance. D'un point de vue mathématique, illustré sur la figure 3, on acquiert d'abord les deux signaux (fig. 3a) :

$$M(R, \lambda_{on}) = M_0(\lambda_{on}) A/R^2 \Delta R \cdot \beta(R, \lambda_{on}) \zeta_{on}(R) \exp \left\{ -2 \int_0^R \alpha(R, \lambda_{on}) dR \right\}$$

et

$$M(R, \lambda_{off}) = M_0(\lambda_{off}) A/R^2 \Delta R \cdot \beta(R, \lambda_{off}) \zeta_{off}(R) \exp \left\{ -2 \int_0^R \alpha(R, \lambda_{off}) dR \right\}$$

En divisant l'un par l'autre, on obtient (fig. 3b) :

$$\frac{M(R, \lambda_{off})}{M(R, \lambda_{on})} = \chi \cdot \frac{\beta(R, \lambda_{off}) \zeta_{off}(R)}{\beta(R, \lambda_{on}) \zeta_{on}(R)} \exp 2 \int_0^R (\alpha(R, \lambda_{on}) - \alpha(R, \lambda_{off})) dR$$

où χ est un facteur indépendant de la distance R ,

$$\text{soit } \chi = \frac{M_0(\lambda_{on})}{M_0(\lambda_{off})} \cdot \frac{\zeta(\lambda_{on})}{\zeta(\lambda_{off})}$$

Comme λ_{on} et λ_{off} sont suffisamment proches, les caractéristiques de diffusion Rayleigh-Mie sont supposées identiques, en particulier pour les coefficients de rétrodiffusion β et d'extinction $\alpha_{Ray} + \alpha_{Mie}$. Autrement dit : $\beta(R, \lambda_{on}) = \beta(R, \lambda_{off})$ et $\alpha_{Ray}(\lambda_{on}) + \alpha_{Mie}(\lambda_{on}) = \alpha_{Ray}(\lambda_{off}) + \alpha_{Mie}(\lambda_{off})$. De plus, pour un alignement géométrique constant des deux lasers, on a $\zeta_{off}(R) = \zeta_{on}(R)$.

Le rapport ci-dessus s'écrit donc :

$$\frac{M(R, \lambda_{off})}{M(R, \lambda_{on})} = \chi \exp \left\{ 2 \int_0^R (\alpha_{\lambda_{on}}(R, \lambda_{on}) - \alpha_{\lambda_{on}}(R, \lambda_{off})) dR \right\}$$

Comme $\alpha_{\lambda}(R, \lambda) = N(R) \sigma(\lambda)$, en prenant le logarithme du quotient ci-dessus on obtient la concentration spécifique intégrée de SO_2 en fonction de la distance (fig. 3c) :

$$\int_0^R N(R) dR = \frac{1}{2\Delta s} \left(\ln \frac{M(R, \lambda_{off})}{M(R, \lambda_{on})} - \ln(\chi) \right)$$

où $\Delta s = s(\lambda_{on}) - s(\lambda_{off})$.

Pour obtenir la concentration résolue spatialement, il suffit donc de dériver, de sorte que la concentration de polluant à la distance R vaut (fig. 3d) :

$$N(R) = \frac{1}{2(\sigma(\lambda_{on}) - \sigma(\lambda_{off}))} \frac{d}{dR} \ln \left(\frac{M(R, \lambda_{off})}{M(R, \lambda_{on})} \right)$$

Pour une résolution du système ΔR finie, l'équation ci-dessus s'écrit :

$$N(R) = \frac{1}{2(\sigma(\lambda_{on}) - \sigma(\lambda_{off}))} \frac{1}{\Delta R} \ln \left(\frac{M(R, \lambda_{off}) M(R + \Delta R, \lambda_{on})}{M(R, \lambda_{on}) M(R + \Delta R, \lambda_{off})} \right)$$

N.B. : $N(R)$ est exprimée en moléc./cm³ ; si l'on veut $N(R)$ en ppm, on divise les deux membres par $N_{STP} = 2.69 \cdot 10^{19}$ cm⁻³ qui est le nombre total de molécules par cm³ dans l'air à pression et température standard, et on multiplie par 10⁶ (pour les ppm).

On notera que tous les éléments de cette formule sont, soit connus en tant que caractéristiques de l'appareil (ΔR) ou du gaz à mesurer ($\lambda_{on}, \lambda_{off}$), soit mesurés (puissances rétrodiffusées). La concentration peut donc être calculée sans qu'il soit besoin d'appliquer un coefficient de calibration. Ceci permet entre autres de calculer, a priori, l'effet d'un interférent sur le signal relatif à une espèce mesurée (cf. § 4.3).

La précision de la mesure DIAL dépend de facteurs stochastiques (bruit) et d'erreurs systématiques [3-4]. Les principales erreurs statistiques qui limitent le rapport signal/bruit et qui sont responsables de l'écart-type sur les mesures de concentration ci-dessus, sont :

- les fluctuations atmosphériques (mouvement Brownien des aérosols, variabilité de la concentration à mesurer,
- la statistique des photons (à très faible signal),
- le bruit électronique (amplificateurs, ADC,...),
- les fluctuations des longueurs d'onde émises par le laser.

Les principales erreurs systématiques, quant à elles, peuvent être listées ainsi :

- erreur de longueur d'onde émise par le laser (shift),
- erreur de mesure de la section efficace (température, pression, largeur de bande du laser),
- mauvais alignement optique des deux faisceaux laser (colinéarité et mode).

Il est important de noter que toutes ces sources d'erreur statistique ou systématique sont parfaitement prises en compte par la procédure combinée (mesure à 2 fois la même longueur d'onde) évoquée au § 4.2.b.

Notons enfin qu'il faudra prendre garde aux corrections Mie lors de gradients de concentration de particules élevés (p.ex. nuages), et lorsque la différence entre λ_{on} et λ_{off} est supérieure à quelques nm, ce qui est le cas par exemple pour la mesure de l'ozone.

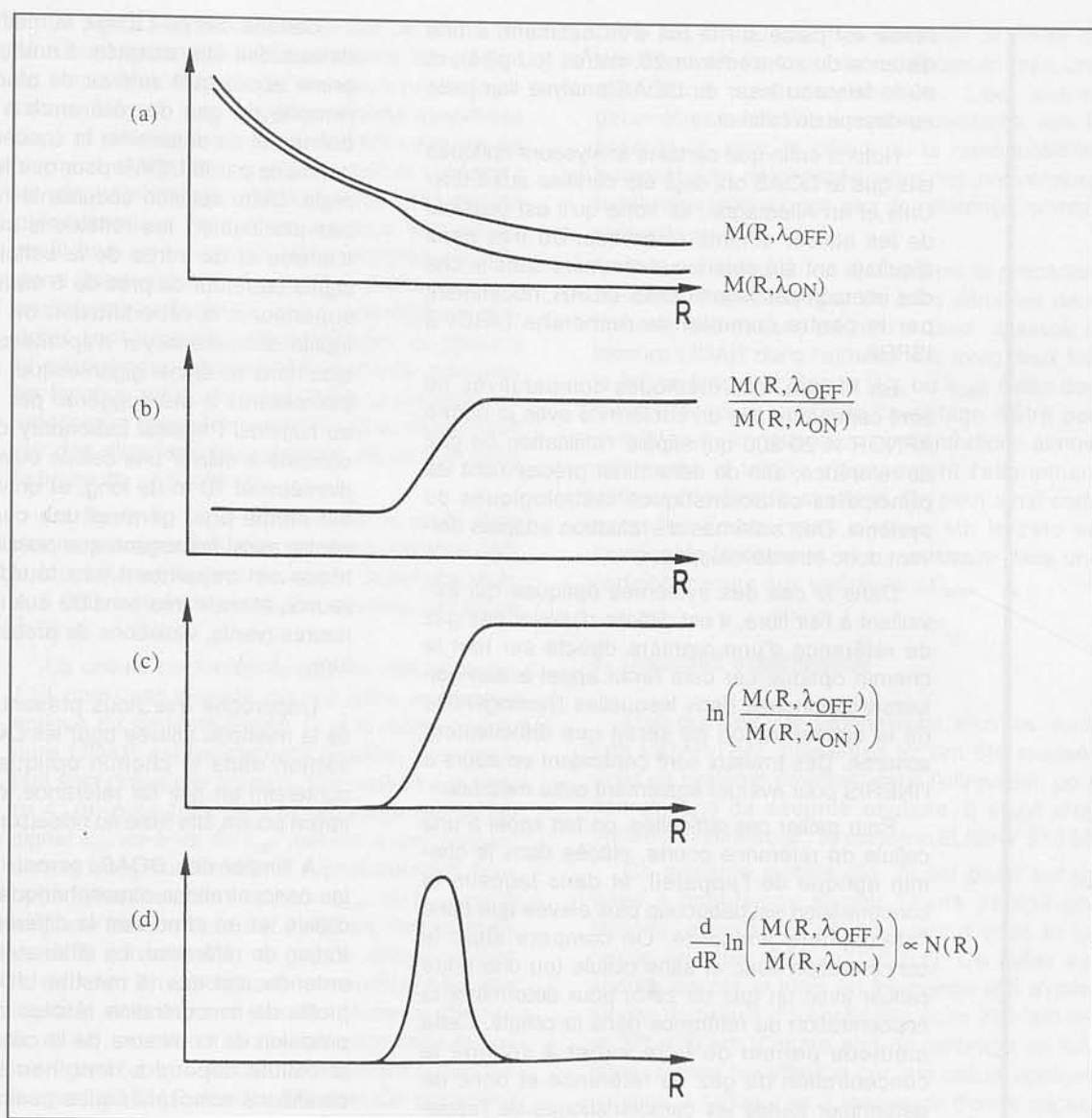


Figure 3.
Traitement des signaux LIDAR.
Lidar signal processing.

2. Les méthodes de calibrage et d'évaluation

La description qui vient d'être faite de la technique LIDAR permet de concevoir que le calibrage et l'évaluation d'un tel système est difficile à réaliser avec les outils traditionnels. Parmi les méthodes envisagées figure la comparaison avec des analyseurs ponctuels de référence. Mais comme il est difficile, a priori, d'effectuer une comparaison directe, il a été nécessaire de développer des stratégies permettant d'assurer la représentativité des résultats.

On peut distinguer à cet effet trois cas typiques extrêmes, liés à l'homogénéité de la concentration du polluant mesuré :

1) un polluant secondaire dans un milieu éloigné des émetteurs (p.ex. ozone en milieu rural),

2) un polluant primaire proche de différents émetteurs (p.ex. NO en milieu urbain) et,

3) un émetteur unique. Dans ce dernier cas, la comparaison LIDAR-analyseur classique est aisée, car la forte concentration émise autorise une grande résolution spatiale du LIDAR (typ. 1.5 m), et donc une mesure pratiquement ponctuelle [5].

Dans le cas d'un polluant en milieu rural, la concentration est relativement homogène et une intégration sur un parcours plus long (centaine de m) reste représentative de la mesure ponctuelle effectuée par l'analyseur de référence. La comparaison la plus délicate est bien entendu constituée par des mesures en milieu urbain. Dans ce cas, des résultats satisfaisants ont été obtenus en adoptant une stratégie où l'analyseur de réf-

rence est placé sur le toit d'un bâtiment, à une distance du sol d'environ 20 mètres (ou plus), et où le faisceau laser du LIDAR analyse l'air juste au-dessus de celui-ci.

Notons enfin que certains analyseurs optiques tels que le DOAS ont déjà été certifiés aux États-Unis et en Allemagne, de sorte qu'il est possible de les utiliser comme référence. De très bons résultats ont été obtenus récemment dans le cas des intercomparaisons DOAS-LIDAR, notamment par le centre commun de recherche (JRC) à ISPRA.

En France, ces méthodes comparatives ne sont cependant pas en conformité avec la norme AFNOR X 20-300 qui stipule l'utilisation de gaz de référence, afin de déterminer précisément les principales caractéristiques métrologiques du système. Des schémas d'évaluation adaptés doivent donc être développés.

Dans le cas des systèmes optiques qui travaillent à l'air libre, il est difficile d'utiliser des gaz de référence d'une manière directe sur tout le chemin optique car cela ferait appel à des cellules très longues dans lesquelles l'homogénéité de la concentration ne serait que difficilement assurée. Des travaux sont cependant en cours à l'INERIS pour évaluer également cette méthode.

Pour pallier ces difficultés, on fait appel à une cellule de référence courte, placée dans 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 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 (3) aux États-Unis, le VDI-DIN (4) [6] en Allemagne, et l'INERIS en France pour les systèmes DOAS. Notons encore, d'un point de vue technique, que les méthodes optiques utilisent la différence d'absorption optique d'un polluant à plusieurs longueurs d'onde selon la loi de Beer-Lambert bien connue, et que le paramètre déterminant pour la mesure est l'absorbance (produit de la section efficace d'absorption, du nombre de molécules par unité de volume, et de la longueur du trajet optique). Comme la section efficace d'absorption est fixée, le signal reçu est fonction du produit concentration x longueur. On obtiendra donc le même signal pour une forte concentration sur un trajet ou une faible concentration sur un long trajet, de sorte que les caractéristiques de ces systèmes peuvent être exprimées en ppm.m ou ppb.km.

(3) EPA = Environmental Protection Agency.

(4) VDI-DIN = Verein Deutscher Ingenieure - Deutsche Industrie Normer.

Dans le cas du LIDAR, la méthode décrite ci-dessus doit être adaptée. En effet, il semble de prime abord qu'il suffirait de placer une cellule remplie de gaz de référence à une distance donnée et de déterminer la concentration correspondante par le LIDAR pour que le problème soit réglé. Cette solution séduisante n'est cependant pas praticable : les réflexions sur les fenêtres d'entrée et de sortie de la cellule génèrent un signal de retour de près de 6 ordres de grandeur supérieur à la rétrodiffusion de l'atmosphère ! Inutile donc d'essayer d'apercevoir la rétrodiffusion dans ce signal gigantesque. Une alternative intéressante a été suggérée par P. WOODS [7] au National Physical Laboratory de Londres, qui consiste à utiliser une cellule ouverte de 3 m de diamètre et 10 m de long, et dont le flux de gaz est étudié pour générer une concentration au centre aussi homogène que possible. Cette technique est cependant très lourde à mettre en œuvre, et reste très sensible aux influences extérieures (vents, variations de pression et température, ...).

L'approche que nous présentons ici, proche de la méthode utilisée pour les DOAS, utilise l'insertion dans le chemin optique d'une cellule contenant un gaz de référence, dont la concentration pourra être fixée au niveau requis (figure 1).

A l'instar des DOAS, seront donc mesurées les concentrations atmosphériques avec et sans cellule, et en effectuant la différence, la concentration de référence. La différence majeure, bien entendu, est que la mesure LIDAR fournit des profils de concentration résolus spatialement. La précision de la mesure de la concentration dans la cellule dépendra donc non seulement des conditions atmosphériques comme dans le cas du DOAS, mais également de la distance choisie dans le profil pour cette mesure. Comme le signal rétrodiffusé décroît avec la distance, la précision de la mesure aussi, et on déterminera donc les limites de détection en fonction de celle-ci. Cette procédure n'est cependant applicable, à l'instar du DOAS, que si $C_{cell} \times L_{cell} \gg \Delta C_{atm} \times R$, où C_{cell} et L_{cell} sont les concentrations et longueur de la cellule, R la distance de mesure et ΔC_{atm} la variation de concentration atmosphérique moyenne (i.e. moyennée de 0 à R) entre les mesures LIDAR avec et sans cellule. On préférera donc les situations atmosphériques stables et peu polluées. Sinon, seules des bornes supérieures de la limite de détection seront obtenues. Pour mieux préciser la procédure présentée ici, prenons un exemple réel de mesures, obtenues lors de la campagne de pré-évaluation à l'INERIS en septembre 1996. Deux cellules étaient placées alternativement dans le faisceau, l'une contenant le gaz de référence à mesurer, l'autre un gaz de zéro. La configuration expérimentale précise utilisée lors de cette campagne est donnée au § 3.

La figure 4a présente les profils de rétrodiffusion bruts (normalisés à la puissance laser M_0 et au carré de la distance, et dont on a pris le logarithme naturel) aux longueurs d'onde absorbées (λ_{on}) et de référence (λ_{off}) de l'atmosphère de Verneuil-en-Halatte ce jour là, cellule vide (gaz de zéro). En appliquant la technique DIAL décrite précédemment, on tire de ces deux signaux un profil brut de la concentration intégrée de SO_2 dans l'atmosphère (figure 4b), d'une manière analogue à la figure 3c. Les concentrations intégrées sont faibles (quelques ppb.km, ou ppm.m) et on distingue clairement la perte de précision en fonction de la distance. Dans la pratique, on améliore le rapport signal sur bruit en moyennant sur des distances plus grandes (résolution dans la figure 4b : 7,5 mètres).

La figure 4c représente ce même profil avec des moyennes effectuées sur des intervalles dont la longueur varie avec le rapport signal sur bruit. A 1 000 mètres la résolution spatiale est ici de ± 50 m.

La cellule contenant le gaz de référence (ici 114 ppm) est ensuite placée dans le chemin optique du système (figure 1) et la même procédure LIDAR est exactement répétée. Les résultats sont présentés figure 5. Par rapport à la figure 4, on note très bien le décalage global du signal λ_{on} vis-à-vis de λ_{off} , menant à une concentration intégrée constante supplémentaire figure 5c (offset valant $114 \text{ ppm} \times L_{cell}$, où L_{cell} est la longueur de la cellule soit 0,453 m), représentative de la concentration de gaz de référence dans la cellule. En effectuant la soustraction des signaux avec et sans gaz de référence (figures 5c et 4c), on obtient la concentration dans la cellule figure 5d, qui est donc directement basée sur les profils LIDAR de rétrodiffusion. On comprend à présent explicitement la condition $C_{cell} \times L_{cell} \gg \Delta C_{atm} \times R$ mentionnée ci-dessus. L'écart-type est représentatif de l'erreur sur la concentration dans la cellule, et celui-ci dépend du point de mesure R_0 dans l'atmosphère choisi sur le profil. Bien entendu, cet écart-type dépend aussi de toutes les caractéristiques techniques du LIDAR, mais en particulier de la résolution spatiale choisie, du temps de moyennage, et des conditions météorologiques. On choisit donc librement un R_0 sur le profil 5d, un temps de moyennage (ici, 1 ou 15 minutes) et une résolution spatiale ΔR (ici, ± 50 et ± 500 mètres) correspondant donc à un intervalle $[R_0 - \Delta R ; R_0 + \Delta R]$. Pour effectuer une analyse statistique conforme à la norme AFNOR X 20-300, la mesure ci-dessus est répétée 8 fois, et la limite de détection est définie comme $2t$ (t = facteur de Student). Un exemple de cette dispersion statistique des mesures est présenté figure 6 (1 minute d'intégration et ± 500 m de résolution).

Notons qu'il est possible de répéter la procédure pour d'autres points de mesure R_0 du même

profil 5d, ce qui permet d'obtenir la limite de détection en fonction de la distance avec une résolution spatiale donnée. Les autres paramètres caractéristiques du système, tels la linéarité, le zéro, la dérive ou la reproductibilité pourront être déterminés selon les conventions habituelles utilisant des gaz de référence, comme présenté au § 3.

Dans la pratique, on ajoute dans la procédure de mesure de zéro (gaz de zéro dans les deux cellules) une mesure de zéro croisée : à savoir la mesure LIDAR dans l'atmosphère avec deux fois la même longueur d'onde (λ_{on} ou λ_{off}). Cette dernière procédure présente l'avantage d'être peu sensible aux variations de concentrations atmosphériques et vérifie efficacement l'alignement optique complet du système. On peut ainsi comparer les écarts-types d'erreur sur le zéro en fonction de la distance, et se soustraire dans une certaine mesure aux variations ΔC_{atm} .

3. Dispositif expérimental

D'un point de vue expérimental, tous les résultats LIDAR/DIAL présentés ici ont été réalisés avec un système émettant dans l'ultraviolet, pour des raisons de sécurité oculaire. Il s'agit d'un système commercial : le système ELIGHT 510 M.

Ce système mobile (fig. 7) est basé sur un laser à impulsions Saphir Titane pompé par lampes, accordable en longueur d'onde et de haute énergie (300 mJ/20 Hz). Ce laser est ensuite doublé et triplé en fréquence afin d'obtenir des domaines d'accordabilité entre 250-300 nm et 375-400 nm. D'autre part, 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 NO_2 , SO_2 , O_3 , Benzène et Toluène [9-10-11]. Ce système (laser de pompage, calibrage des longueurs d'ondes, alignement du télescope et détection des signaux LIDAR) est totalement autonome et piloté par ordinateur.

L'évaluation des principales caractéristiques du LIDAR est basée sur une adaptation de la norme NFX 20-300 en utilisant un dispositif composé d'une cellule placée sur le chemin optique et alimentée en gaz d'essai de concentration élevée et connue. Dans la pratique, deux cellules sont placées alternativement dans le trajet du faisceau entre la source laser et le premier miroir télescope. La première est alimentée en dynamique par des mélanges de SO_2 dans l'air de concentrations connues et reproductibles et la seconde, de mêmes caractéristiques géométriques, est alimentée en air de « zéro ». Ces

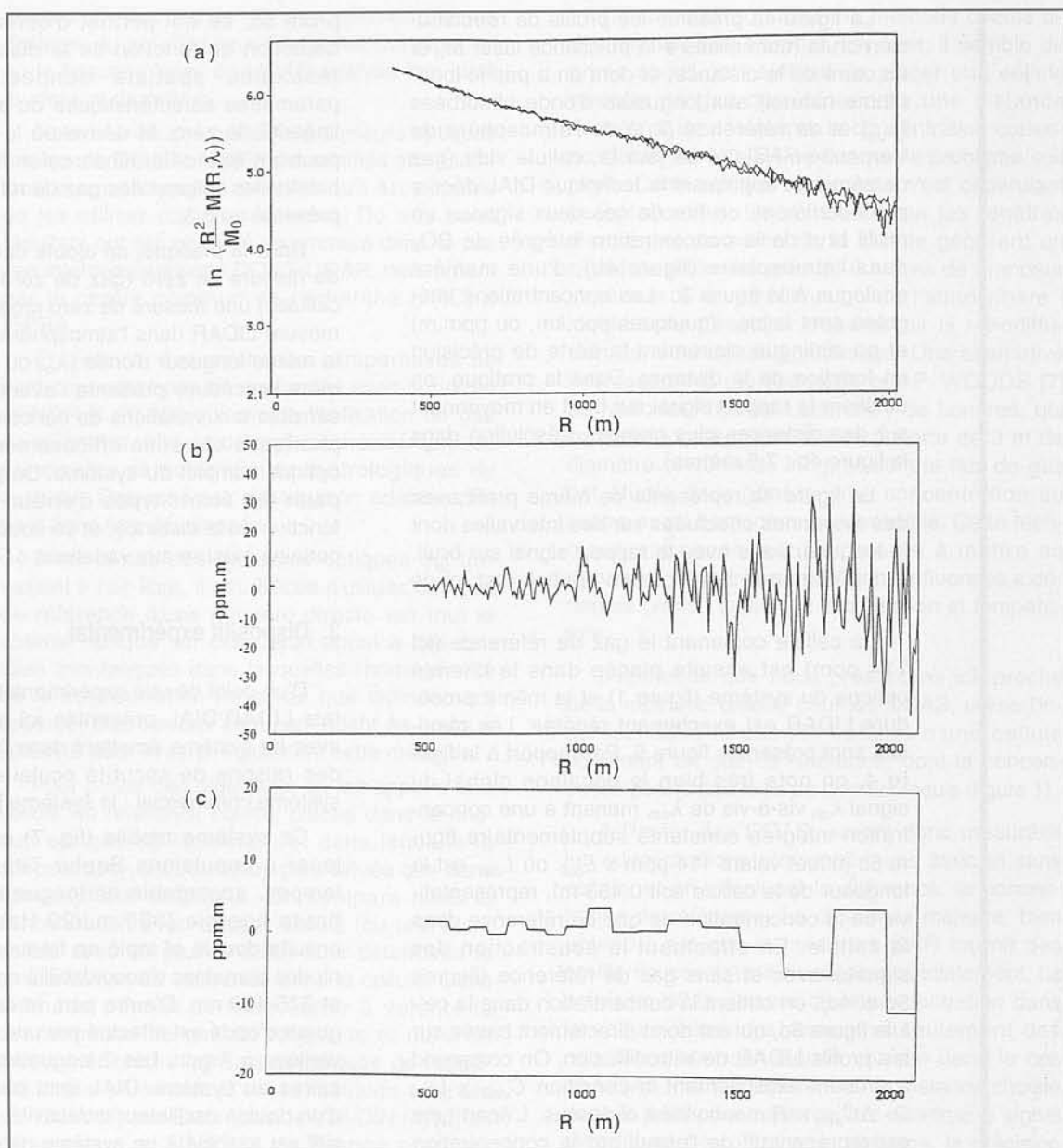


Figure 4.
Profils de retrodiffusion bruts avec cellule « gaz de zéro ».
Raw retrodiffusion profiles with a zero gas cell.

deux cellules, en quartz, d'une longueur de 453 mm chacune, se déplacent parallèlement à l'aide de vérins pneumatiques commandés automatiquement par le micro-ordinateur (figure 7).

Le faisceau, ayant traversé l'une à l'autre cellule est émis à l'atmosphère, et le rayonnement rétrodiffusé est traité comme indiqué (cf. § 1).

Tous les essais métrologiques (détermination de la linéarité, de la limite de quantification, des interférences, de la reproductibilité) ont été effectués à l'aide de cette double cellule. Les performances de l'instrument LIDAR ont été ainsi déterminées par la mise en œuvre de séquences

répétées d'un cycle de base (comme le préconise la norme NFX 20-300) comportant :

- la mesure du gaz de « zéro » pendant 1/2 période du cycle,
- la mesure de la concentration C_i pendant la deuxième 1/2 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 ($736 \text{ ppm} \pm 5\%$ relatif) et par de l'air de complément séché, traité, épuré.

Les différentes combinaisons entre les buses du mélange primaire et les buses de l'air de com-

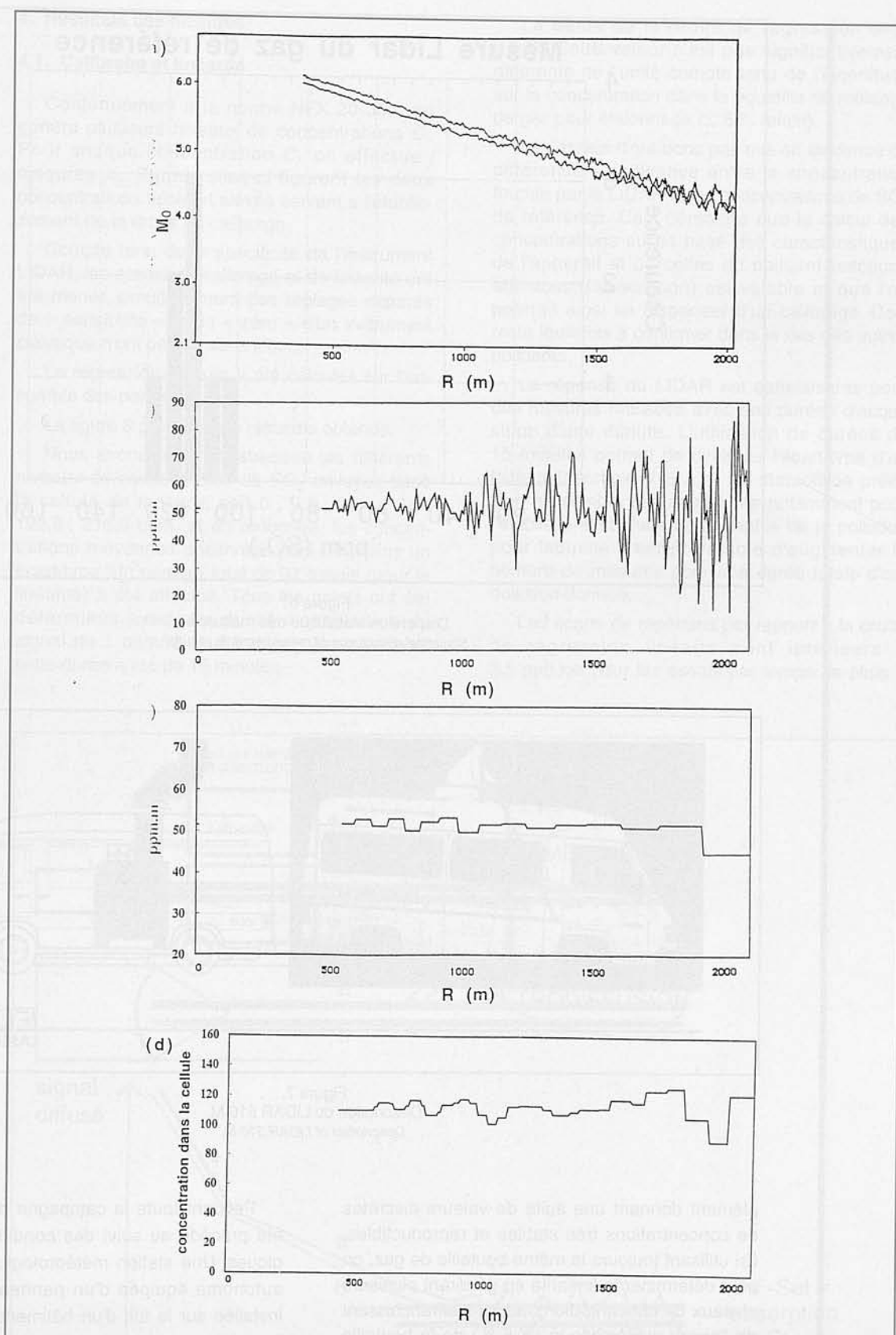


Figure 5.
 Profils de rétrodiffusion bruts avec cellule « gaz de référence SO_2 ».
 Raw retrodiffusion profiles with a SO_2 reference gas cell.

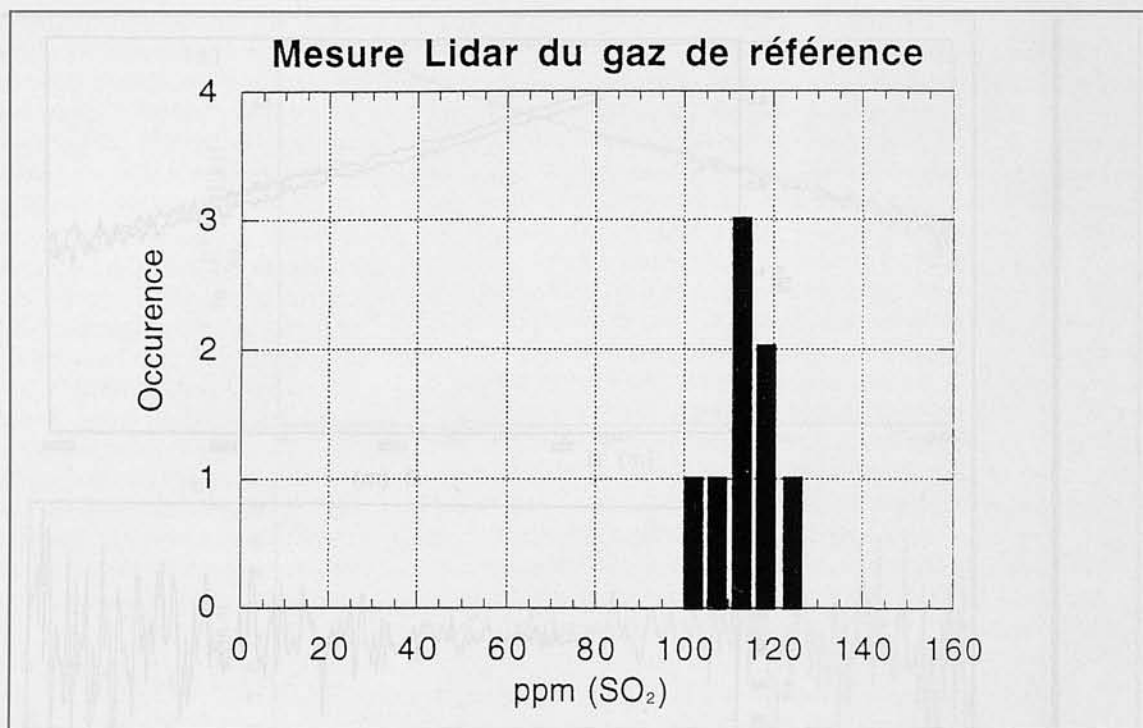


Figure 6.
Dispersion statistique des mesures.
Statistical distribution of measurements results.

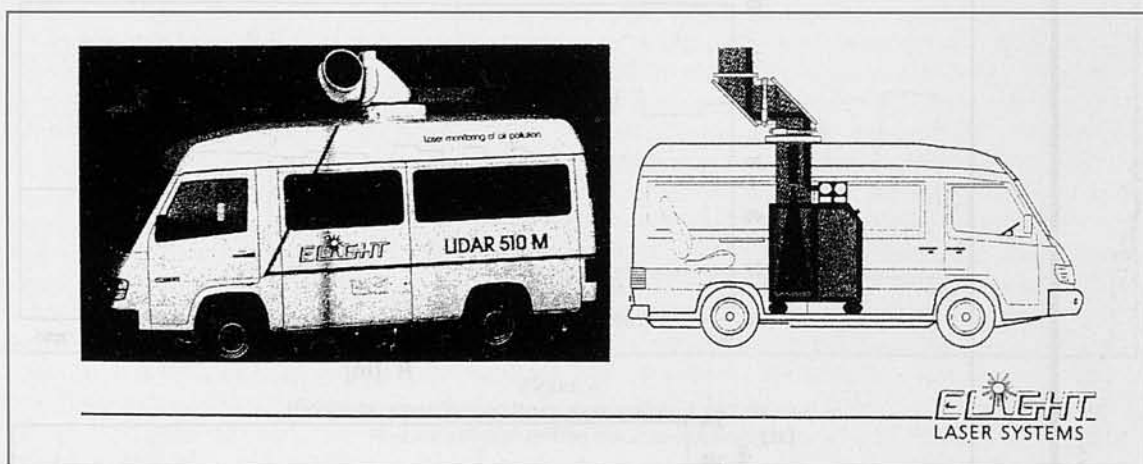


Figure 7.
Description du LIDAR 510 M.
Description of LIDAR 510 M.

plément donnent une suite de valeurs discrètes de concentrations très stables et reproductibles. En utilisant toujours la même bouteille de gaz, on peut déterminer la linéarité en générant plusieurs niveaux de concentrations, et en s'affranchissant de l'erreur systématique ($\pm 5\%$) de la bouteille de mélange de gaz. Le débit de balayage de la cellule dépend de la combinaison choisie.

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

Pendant toute la campagne de mesures, il a été procédé au suivi des conditions météorologiques. Une station météorologique « PULSIA » autonome équipée d'un panneau solaire a été installée sur le toit d'un bâtiment du site afin de suivre en continu les paramètres météorologiques suivants : température sous abri, hygrométrie, rayonnement solaire, pluviométrie, vitesse et direction du vent et enfin la visibilité de l'atmosphère.

4. Résultats des mesures

4.1. Calibrage et linéarité

Conformément à la norme NFX 20-300, on génère plusieurs niveaux de concentrations C_i . Pour chaque concentration C_i , on effectue j mesures X_{ij} . Parmi celles-ci figurent les deux concentrations faible et élevée servant à l'établissement de la droite de calibrage.

Compte tenu de la spécificité de l'instrument LIDAR, les essais de calibrage et de linéarité ont été menés simultanément (les réglages séparés de « sensibilité » et de « zéro » d'un instrument classique n'ont pas de sens ici).

La régression linéaire a été calculée sur l'ensemble des points.

La figure 8 présente les résultats obtenus.

Nous avons porté en abscisse les différents niveaux de concentration de SO_2 envoyés dans la cellule de mesure, soit 0 ; 9,8 ; 24,4 ; 48 ; 122,9 ; 215,5 ppm, et en ordonnée, les concentrations moyennes observées plus ou moins un écart-type. Un nombre total de 32 essais (pour la linéarité) a été effectué. Tous les points ont été déterminés avec une durée d'acquisition du signal de 1 minute sauf 3 essais pour lesquels cette durée a été de 15 minutes.

La pente de la droite de régression est : 0,987. Cette valeur n'est pas significativement différente de l'unité compte tenu de l'incertitude sur la concentration dans la bouteille de mélange de gaz pour étalonnage ($\pm 5\%$ relatif).

Les essais n'ont donc pas mis en évidence de différence significative entre la concentration fournie par le LIDAR et les concentrations de SO_2 de référence. Ceci démontre que le calcul des concentrations sur la base des caractéristiques de l'appareil et de celles du polluant (sections efficaces d'absorption) est valable et que l'on pourrait ainsi se dispenser d'un calibrage. Ceci reste toutefois à confirmer dans le cas des autres polluants.

La réponse du LIDAR est satisfaisante pour des mesures réalisées avec des durées d'acquisition d'une minute. L'utilisation de durées de 15 minutes permet de diminuer l'écart-type d'un facteur théorique $\sqrt{15} \approx 4$. Ce surcroît de précision ne semble pas nécessaire notamment pour l'établissement d'une cartographie de la pollution pour laquelle il est préférable d'augmenter le nombre de mesures pour une durée totale d'acquisition donnée.

Les écarts de réponses par rapport à la droite de régression linéaire sont inférieurs à 3,5 ppb.km pour les essais par temps de pluie à

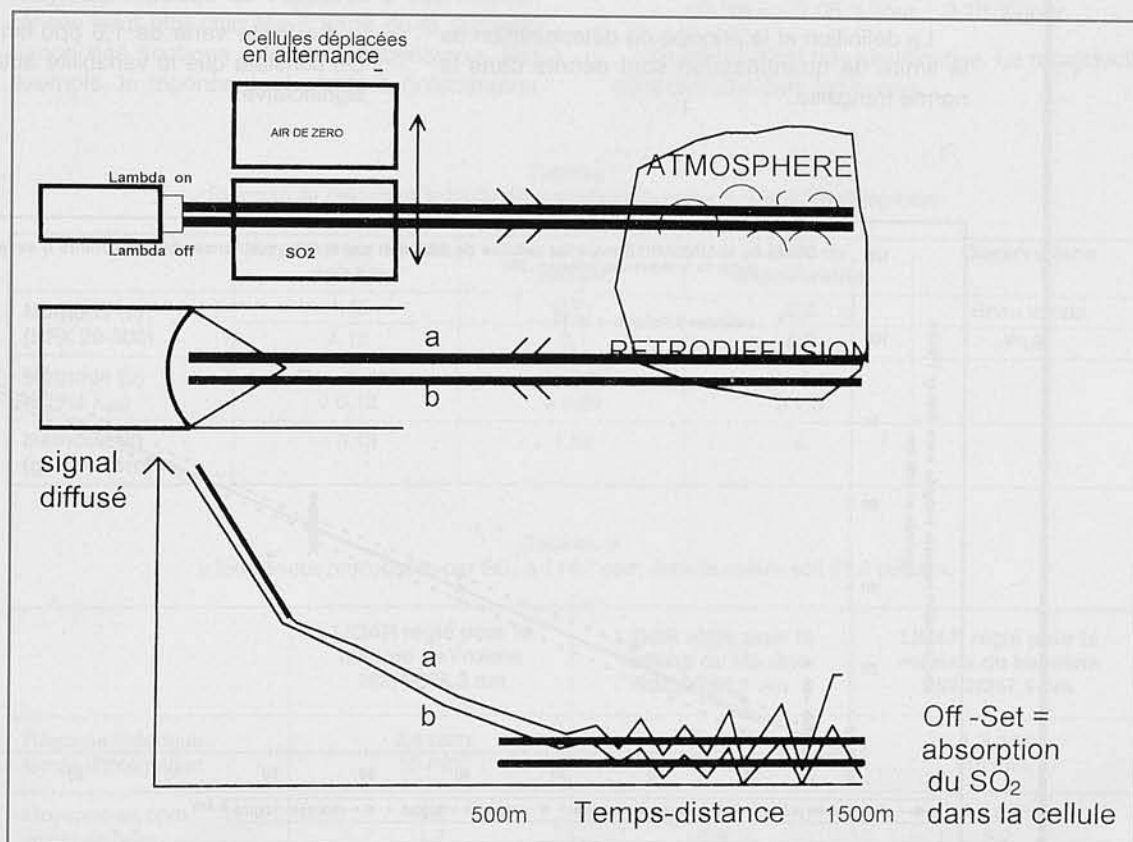


Figure 8.
Principe des essais d'évaluation avec les 2 cellules de quartz.
Principle of evaluation tests with two quartz cells.

bas niveau de concentration et à 2,5 ppb.km pour tous les autres essais.

4.2. Détermination des limites de détection

Ces limites ont été déterminées de trois façons différentes :

- selon la norme française X 20-300 à une concentration faible de SO_2 dans une des deux cellules,
- en se calant deux fois sur la même longueur d'onde λ_{off} ,
- avec les deux cellules remplies de gaz de « zéro ».

Pour chacune de ces méthodes, on mesure les signaux rétrodiffusés et on détermine la moyenne des essais et l'écart-type correspondant.

Les limites de détection sont fonction de l'écart-type s des mesures.

La distribution des valeurs obtenues selon les trois méthodes permet de calculer la limite de quantification qui est égale à deux fois la limite de détection. La limite de détection est le produit de l'écart-type par le coefficient de Student.

a) Limite de quantification selon la norme française X 20-300

La définition et le principe de détermination de la limite de quantification sont décrits dans la norme française.

On a réalisé neuf répétitions des mesures à une concentration faible (9,8 ppm de SO_2 dans la cellule, soit 4,4 ppb.km).

Les conditions atmosphériques ont varié au cours des essais. On a pu ainsi comparer les résultats par temps de pluie et par beau temps.

Par exemple, les résultats pour un essai par beau temps et un deuxième avec de la pluie (15 minutes d'intégration) sont présentés dans le tableau 1 ci-après. La limite de quantification, égale à 2,3 ppb.km par beau temps, est trois fois plus élevée par temps de pluie.

La figure 9 présente l'ensemble des résultats obtenus pour de bonnes et de mauvaises conditions de visibilité.

b) Détermination de la limite de quantification en calant les deux longueurs d'onde sur λ_{off} .

En se calant deux fois sur la même longueur d'onde λ_{off} (peu ou pas d'absorption du polluant mesuré SO_2), on détermine comme précédemment la moyenne et l'écart-type. Cet essai correspond au « zéro de l'appareil » (contrôle de fonctionnement, alignement des faisceaux...). Il est indépendant des fluctuations des concentrations atmosphériques. Les résultats obtenus (sur 15 minutes) sont donnés dans le tableau 1 (ci-après).

La limite varie de 1,6 ppb.km à 2,9 ppb.km. On constate que la variabilité autour du zéro est significative.

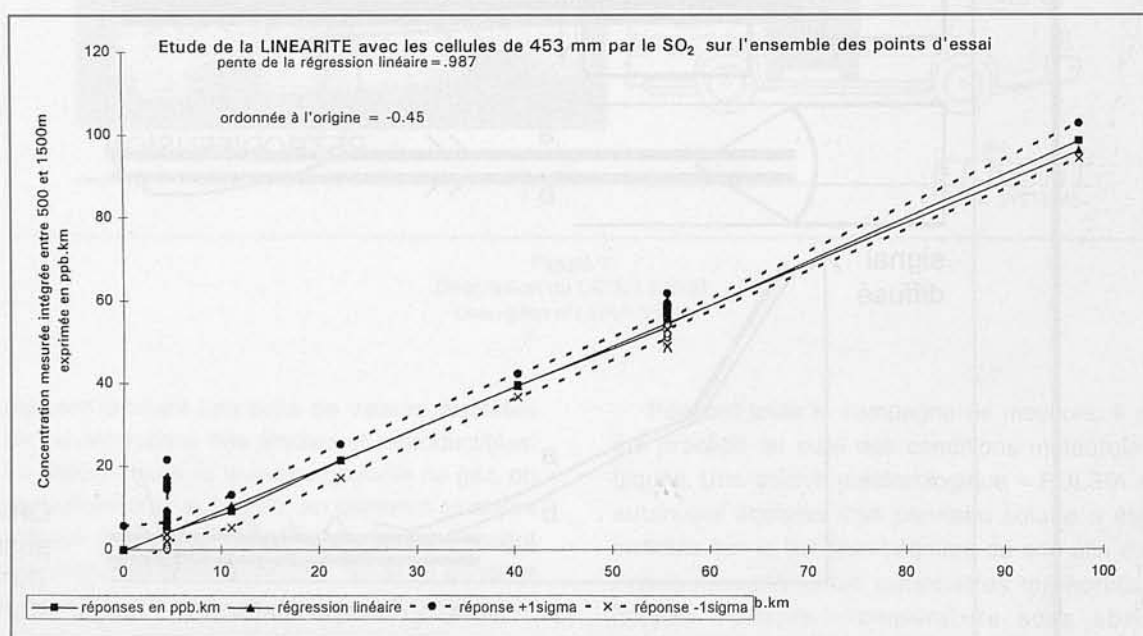


Figure 9.
Etude de la linéarité avec les cellules de 453 mm pour le SO_2 sur l'ensemble des points d'essai.
Linearity study for SO_2 with 453 mm cells including all experimental points.

c) Détermination de la limite de quantification avec les deux cellules remplies de gaz de « zéro »

Un seul essai d'une durée de 1 minute, a été réalisé en se calant sur les deux longueurs d'onde λ_{off} et λ_{on} .

Le résultat obtenu (en corrigeant σ par $\sqrt{n}$ pour comparer les résultats aux précédents) est fourni dans le tableau 1.

4.3. Interférences

La détermination des interférences pour les analyseurs monopolluants consiste à présenter à l'appareil une concentration déterminée de la substance éventuellement interférente en même temps qu'une concentration connue du polluant à doser [11].

On a plutôt choisi ici d'exploiter le caractère multipolluant de l'appareil pour étudier l'influence de SO_2 à une concentration donnée sur la réponse de l'appareil calé successivement sur les longueurs d'onde de mesure du dioxyde d'azote, de l'ozone, du toluène et du benzène.

Les interférences possibles résultent du fait que les spectres d'absorption de NO_2 , SO_2 , O_3 , Benzène, Toluène dans l'UV possèdent des plages communes (voir figure 11 pour SO_2 , O_3 , NO_2). La réponse de l'appareil à ces interférences peut être calculée à partir de la connaissance des sections efficaces d'absorption. Par exemple, la réponse équivalente à l'interférence

de SO_2 à la concentration de 51,8 ppb.km (114,7 ppm dans la cellule) est de 1,55 ppb.km d'ozone.

Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 2 ci-après (sauf pour le NO_2 dont les essais ont été annulés).

On notera que la valeur de l'interférence de SO_2 mesurée est en bon accord avec la valeur calculée pour le LIDAR calé sur l'ozone (4,6 ppm pour 3,4 ppm attendues). Pour le LIDAR en configuration Toluène ou Benzène, les valeurs mesurées sont en revanche assez éloignées des valeurs prévues. Ce point devra faire l'objet d'investigations complémentaires.

4.4. Essais de reproductibilité (dérive)

L'essai de dérive n'a pas pu être mené conformément à la norme française pour des problèmes de sécurité, l'instrument devant être arrêté la nuit. Aussi l'a-t-on remplacé par des essais de reproductibilité. Chaque jour, des mesures étaient réalisées avec l'une des cellules alimentée par du SO_2 à la concentration constante de 122,9 ppm (soit 55,7 ppb.km). Sept essais ont été effectués pour lesquels nous avons déterminé la pente de la droite de régression ainsi que son intervalle de confiance à 95 % de probabilité :

$$\text{dérive} = -0,08 \text{ \%/jour} \pm 0,13 \text{ \%/jour.}$$

La dérive n'est pas significative. La reproductibilité des résultats est bonne.

Tableau I.
Exemple de calculs de la limite de quantification selon 3 méthodes différentes.

	Moyenne sur 15 min. ppb.km	σ ppb.km	Limite de quantification	Observations
Méthode (a) (NFX 20-300)	4,45	0,71	2,3	Beau temps
	4,12	2,1	6,8	Pluie
Méthode (b) (2 fois λ_{off})	De - 0,019 à 0,13	de 0,48 à 0,89	de 1,6 à 2,9	
Méthode (c) (gaz de zéro)	- 0,13	1,52	5	

Tableau II.
Interférences provoquées par SO_2 à 114,7 ppm dans la cellule soit 51,8 ppb.km.

	LIDAR réglé pour la mesure de l'ozone 282,4/286,3 nm	LIDAR réglé pour la mesure du toluène 266,9/266,1 nm	LIDAR réglé pour la mesure du benzène 259,2/257,9 nm
Réponse théorique temps d'intégration	3,4 ppm 15 min.	3,5 ppm 15 min.	1,3 ppm 15 min.
Moyenne en ppm sigma en ppm ou moyenne en ppb.km sigma en ppb.km	4,6 1,7 2,1 0,8	- 3,05 7,9 - 1,38 3,6	0,02 3,2 0,01 1,5

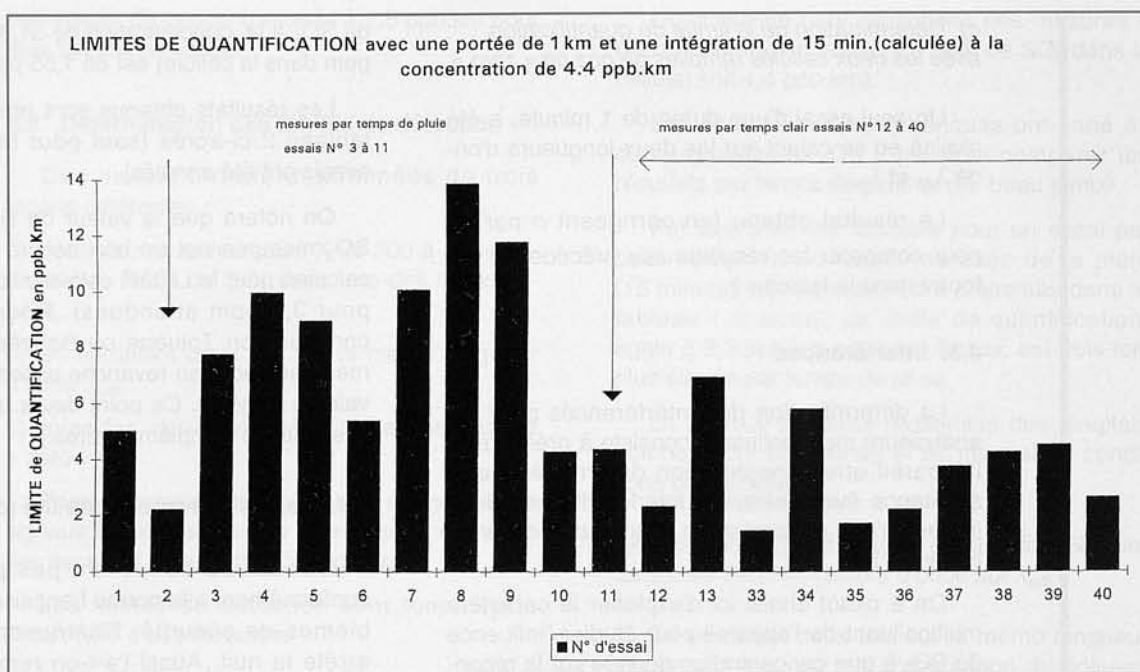


Figure 10.
Limites de quantification avec une portée de 1 km et une intégration de 15 min. (calculée) à la concentration de 4.4 ppb.km.

Quantification limites for a 1 km range and 15 minutes integration time calculated at 4,4 ppb.km concentration

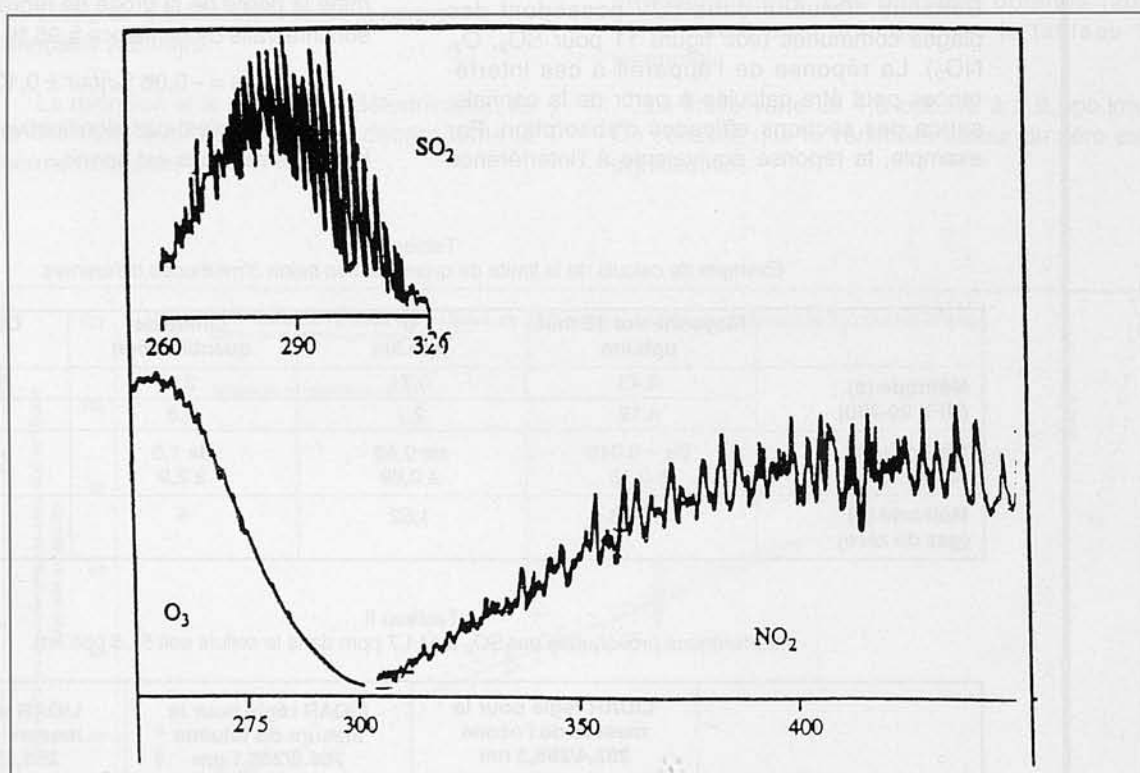


Figure 11.
Spectres d'absorption de SO₂, O₃, NO₂.
Absorption spectra of SO₂, O₃, CO₂.

5. Conclusions

Malgré la durée très courte de mise à disposition du LIDAR 510 M par la Société ELIGHT, les essais prévus ont pu être menés à bien et les principales caractéristiques métrologiques ont été déterminées pour un seul polluant SO_2 . Il ne s'agit toutefois pas d'une évaluation complète puisqu'un certain nombre d'essais n'ont pas été effectués selon la norme : mesure de dérive et détermination des interférences par exemple.

La méthodologie proposée pour l'évaluation s'est révélée pertinente et fiable, au moins pour SO_2 . Il reste à vérifier qu'elle est aussi adaptée pour d'autres polluants susceptibles d'être mesurés par LIDAR comme l'ozone, le dioxyde d'azote, le benzène, ...

Références

- [1] WOLF J.P. *Optical techniques for air pollution monitoring*, in ERCA-Book, Vol. 3. BOUTRON C., Ed. de Physique (1998).
- [2] MESURES R.M. *Laser Remote Sensing*, Ed. Wiley New-York (1984).
- [3] WOLF J.P., KOLSCH H.J., RAIROUX P., WOSTE L. *Remote detection of atmospheric pollutants using DIAL techniques*, in Applied Laser Spectroscopy, DENTRÖDER W. et INGUSCIO M., Plenum, New-York (1990).
- [4] ULBRICHT M., RAIROUX P., REIF J., WEIDAUER D., WOLF J.P. *Calibration procedures of LIDAR systems*, in Optical Sensing Monitoring, SPIE Vol. 2112, p. 1994-1997.
- [5] APITULEY A., VISSER E.P., BERGWERFF J.B., DE WINTER J.M., DE BAKER H., ALAART M.A.F. *RIVM tropospheric ozone LIDAR routine measurements validation and analyses*, in Advances in Atmospheric Remote Sensing with LIDAR, Springer Verlag, 1996, p. 375-378.
- [6] VDI-RICHTLINIEN VD 4210, Beuth Verlag, Berlin (1997).
- [7] MILTON M.J.T., WOOD P.T., PARTRIDGE R.H., GOODY B.A. *Calibration of DIAL and open path system using external gas cells*, proceeding EUROPTO (1995), SPIE, Vol. 2506, p. 680-688.
- [8] BRASSINGTON D.J. *SO_2 absorption cross-section measurements from 290 to 313 nm*, Applied Optics, 20, 1981, p. 3774-3779.
- [9] BENISTON M., BENISTON-REBETEZ M., KOLSCH H.J., RAIROUX P., WOLF J.P., WOSTE L. *Use of LIDAR measurements and numerical models in air, pollution research*, Journal of Geophysical Research, Vol. 95, D7, 1990, p. 9879-9894.
- [10] RAPOPORT W.R., KHATTAK C.P. *Titanium sapphire laser characteristics*, Applied Optics, 27, 1988, p. 2677-2684.
- [11] WEIDAUER D., RAIROUX P., ULBRICHT M., WOLF J.P., WOSTE L. *Ozone, VOC, NO_2 , SO_2 , and aerosol monitoring in urban and industrial areas using a mobile DIAL system*, in Advances in Atmospheric Remote Sensing with LIDAR, Springer Verlag (1996).