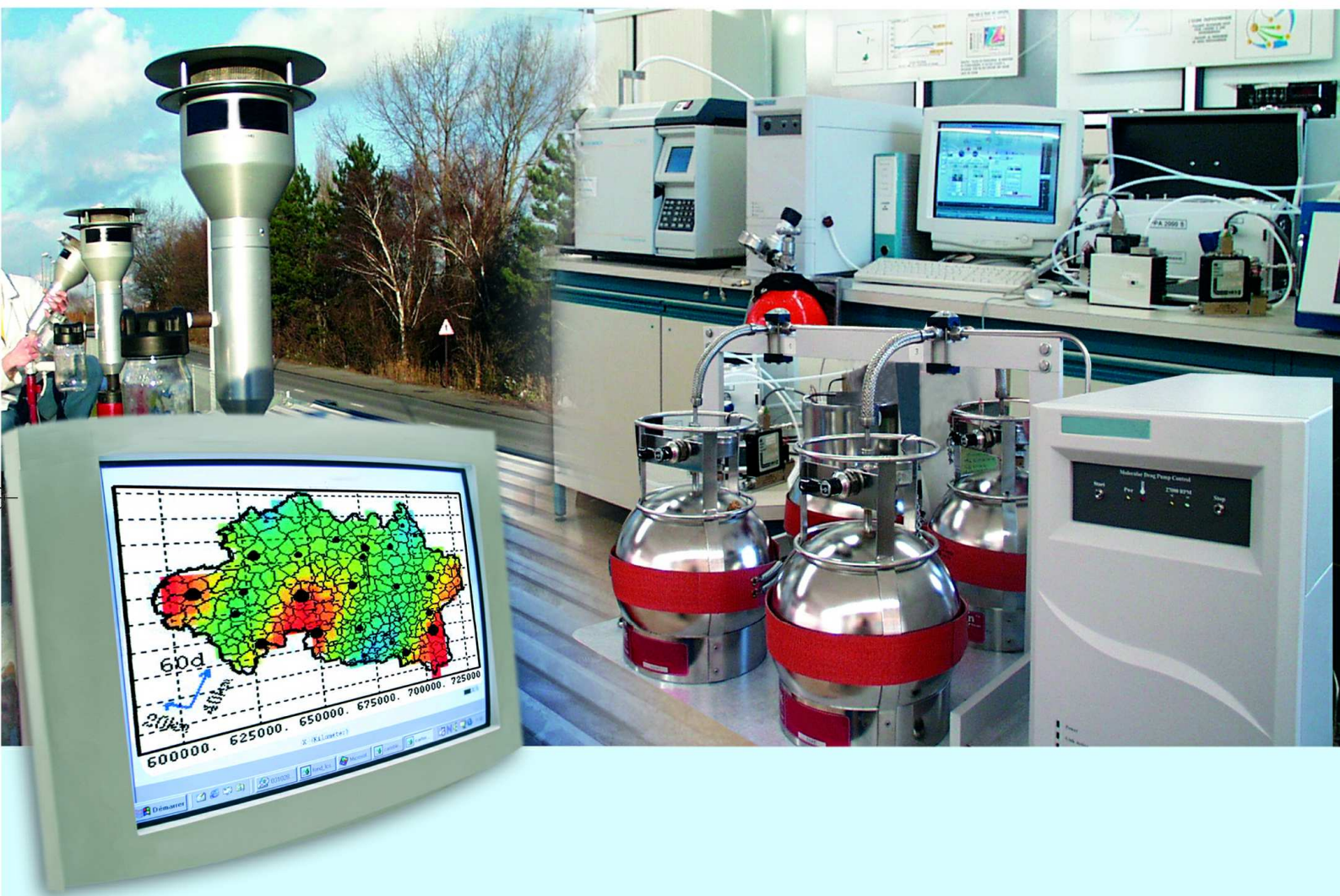




## Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



### Surveillance des particules submicroniques

Novembre 2005 - version finale

Convention: 05000051

O. Le Bihan, F. Mathé





Ministère de l'Ecologie  
et du Développement Durable

## PREAMBULE

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

**Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué de laboratoires de l'Ecole des Mines de Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches finalisées à la demande du Ministère chargé de l'environnement, sous la coordination technique de l'ADEME et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique supportés financièrement par la Direction des Préventions des Pollutions et des Risques du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique aux AASQA.**

**L'objectif principal du LCSQA est de participer à l'amélioration de la qualité des mesures effectuées dans l'air ambiant, depuis le prélèvement des échantillons jusqu'au traitement des données issues des mesures. Cette action est menée dans le cadre des réglementations nationales et européennes mais aussi dans un cadre plus prospectif destiné à fournir aux AASQA de nouveaux outils permettant d'anticiper les évolutions futures.**



Ministère de l'Écologie  
et du Développement Durable

## Surveillance des particules submicroniques

Laboratoire Central de Surveillance  
de la Qualité de l'Air

Convention 05000051

Financée par la Direction des Préventions des Pollutions et des Risques  
(DPPR)

Novembre 2005

C. Ampe (AIRPARIF), R. Aujay, S ; Geffroy, B. Herbin (EMD), O. Le Bihan, H. Marfaing (AIRPARIF), T. Macé (LNE), F. Mathé (EMD), M. Reynaud, A. Smith.

Ce document comporte 40 pages (hors couverture et annexes).

	<b>Rédaction</b>	<b>Vérification</b>	<b>Approbation</b>
<b>NOM</b>	O. LE BIHAN	J. POULLEAU	M.RAMEL
<b>Qualité</b>	Ingénieur, unité « qualité de l'air »	Ingénieur, Adjoint de l'unité « qualité de l'air »	Responsable LCSQA/INERIS Direction des Risques Chroniques
<b>Visa</b>			



## TABLE DES MATIERES

<b>1. RESUMÉ.....</b>	<b>2</b>
<b>2. INTRODUCTION .....</b>	<b>3</b>
<b>3. VEILLE ET PROSPECTIVE .....</b>	<b>4</b>
<b>4. DÉVELOPPEMENT D'UN OUTIL D'ANALYSE.....</b>	<b>6</b>
4.1 Contexte et objectif .....	6
4.2 Le logiciel gA3.....	6
4.3 Exemple .....	7
<b>5. SUIVI DANS LE TEMPS.....</b>	<b>9</b>
5.1 Principe : rappel .....	9
5.2 Résultats de la campagne 2005.....	9
5.3 Comparaison 2003-2005.....	10
5.3.1 Concentration en nombre et masse :.....	10
5.3.2 Corrélations .....	10
5.3.3 Profil journalier :.....	13
5.3.4 Distribution en taille .....	13
5.4 Visualisation à l'aide du logiciel gA3 .....	15
5.4.1 Test du Khi2 : .....	15
5.4.2 Utilisation de gA3 sur la base hivernale 2005 : résultats .....	17
5.5 Conclusion .....	20
<b>6. TYPOLOGIE.....</b>	<b>22</b>
6.1 Campagne de mesure sur un site ouvert sous influence automobile .....	22
6.1.1 Observations SMPS-APS.....	22
6.1.2 Comparaison SMPS-APS et ELPI .....	27
6.1.3 Mise en œuvre du compteur optique Grimm .....	30
6.1.4 Comparaison ELPI-TEOM.....	31
6.2 Campagne de mesure estivale sur le site de référence .....	34
<b>7. CONCLUSION.....</b>	<b>40</b>
<b>8. RÉFÉRENCES .....</b>	<b>40</b>

## **1. RESUME**

Les particules submicroniques, et plus particulièrement ultrafines, font l'objet d'une attention toute particulière de la part de la communauté scientifique du fait de leur influence potentielle sur la santé.

Face à ces interrogations, le LCSQA a engagé dès 2003 une étude spécifique, basée sur une philosophie de surveillance.

Après deux années de définition (2003 et 2004), ce programme d'action a désormais un caractère pérenne ; son objectif est :

- de constituer un noyau de compétences et de connaissance sur le thème de la taille et du nombre,
- de documenter la situation française à travers une caractérisation dans l'espace et le temps.

Cette expertise bénéficie à la communauté française, au sens le plus large : AASQA mais aussi InVS, Comité de prévention et de précaution, Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), Conseil National de l'Air.

L'exercice 2005 a été particulièrement riche, puisque :

- D'une part, l'action « suivi dans le temps » atteint un premier niveau de maturité avec le recul et le volume de trois campagnes.
- D'autre part, nous enregistrons les premiers retours de l'action « typologie », avec deux campagnes, l'une sur un site à influence automobile, l'autre sur le site de référence en période estivale.

En terme de résultats,

- Les observations de la campagne de mesure hivernale 2005 confirment les résultats des années précédentes, en apportant désormais un certain poids statistique. Nous disposons ainsi d'une bonne connaissance de la gamme de variabilité des différents paramètres.
- Nous relevons un niveau de concentration plus important au niveau du site à influence trafic, ainsi que sur le site de référence en période estivale, suggérant dans ce dernier cas l'intervention de processus photochimiques (restant à déterminer).

Par ailleurs, nous poursuivons un travail de test et de développement d'outils :

- nous avons ainsi considéré en collaboration avec l'EMD, le potentiel de l'impacteur ELPI ;
- nous avons également développé au sein de l'INERIS un logiciel de reconstruction des spectres granulométriques, permettant de rechercher d'éventuels sous-groupes de particules et offrant un mode de visualisation simplifié.

## **2. INTRODUCTION**

La communauté française de la surveillance de la qualité de l'air a engagé début 2003 une action sur le thème des particules submicroniques.

Son objectif est de constituer un noyau de compétences et de connaissance au niveau national au sein du LCSQA, sur le thème de la taille et du nombre. Cette approche est d'une part complémentaire à l'approche PM, et d'autre part, vient répondre à une préoccupation croissante, en terme de santé, quant aux effets spécifiques des particules ultrafines.

Après deux années de définition (2003 et 2004), ce programme d'action a désormais un caractère pérenne ; son objectif est de documenter la situation française à travers une caractérisation dans l'espace et le temps.

L'expertise constituée grâce à cette action pilote est désormais sollicitée par différents acteurs nationaux : information à destination de l'InVS (janvier 2005), audition par le Comité de prévention et de précaution (MEDD : saisine «nanoparticules» - audition au 1er juillet 2005), information à l'intention de l'inspection générale du CEA (présentation des actions et connaissances sur les particules ultrafines / nanoparticules, octobre 2005), et enfin audition par le Conseil National de l'Air (audition du 18 janvier 2006).

Le rapport d'activité présenté ici porte sur les actions menées en 2005 : éléments marquants en terme de veille et prospective (chapitre 3), développement d'un logiciel d'exploitation et d'analyse (chapitre 4), résultats dans le domaine de la caractérisation dans le temps (chapitre 5) et l'espace (chapitre 6).

### **3. VEILLE ET PROSPECTIVE**

#### **Communauté de la surveillance de la qualité de l'air, et particules submicroniques**

Différents pays européens mènent des études de caractérisation des particules submicroniques [Le Bihan 2004] ; cependant, cette approche a surtout relevé jusqu'ici de la recherche.

Il était donc nécessaire que cette thématique soit abordée également en terme de surveillance de la qualité de l'air.

Sur ce plan, nous notons une évolution symbolique puisqu'un congrès dédié à la surveillance des particules (PM) prévu en juin 2006 et organisé par VMM (Belgique) / AQUILA, abordera cette question, principalement à travers l'expérience Suisse (comptage de particules, en continu, sur 6 stations de surveillance de l'agglomération de Zurich).

#### **Nanoparticules**

Nous avons assisté cette année à une très forte mobilisation autour des « nanoparticules ».

Cette préoccupation émergente est à mettre en relation avec le développement exponentiel d'une nouvelle industrie : celle des nanomatériaux et nanotechnologies.

En effet, la production de matériaux « pensés » à l'échelle nanométrique, permet d'accéder à des produits dotés de propriétés totalement nouvelles, et bien souvent révolutionnaires.

Un souci très marqué a fait jour quant à la prise en compte, d'ores et déjà, des risques potentiels encourus au niveau de la production (exposition du personnel), et au niveau de l'utilisation (exposition du public, rejets dans l'environnement).

Les techniques pouvant être utilisées pour caractériser l'exposition associée à ce nouveau type de produits, sont extrêmement proches de celles utilisées dans le cadre de cette étude (pollution atmosphérique/particules ultrafines).

Ce nouveau champ d'investigation est à prendre en compte très sérieusement dans le cadre de la présente étude. En effet :

- d'une part, le savoir-faire et les connaissances acquis en surveillance de la qualité de l'air, sont utiles pour éclairer les personnes concernées par l'exposition aux nanoparticules « industrielles » : les particules ultrafines notamment « urbaines » constituent un bruit de fond qu'il convient de prendre en compte et donc de connaître ;
- d'autre part, nous devrions bénéficier de retombées associées à l'ensemble de ces développements : il devrait s'agir tout d'abord de développements en terme métrologique, mais aussi en terme épidémiologique ; en effet, l'exposition en milieu professionnel est plus spécifique, plus facile à caractériser et à isoler que l'exposition du public.



## **Surface spécifique**

S'il est démontré que la taille des particules joue un rôle primordial quant à leur taux de dépôt dans le système respiratoire, et à l'emplacement de celui-ci, leur potentiel d'interaction pourrait être pour sa part associé au nombre de sites actifs disponibles à leur surface.

Il est possible de faire une estimation de la surface d'une particule à partir de son diamètre, en supposant qu'elle est sphérique. Toutefois, la présence d'agrégats de structure fractale, notamment dans les rejets diesel, fait que cette estimation n'est pas adaptée : une mesure réelle de cette surface serait souhaitable.

C'est pourquoi nous assistons à des actions de recherche sur ce sujet, visant à la mise au point de techniques de mesure. Un premier produit devrait être disponible début 2006, commercialisé par la société TSI.

## **4. DEVELOPPEMENT D'UN OUTIL D'ANALYSE**

### **4.1 CONTEXTE ET OBJECTIF**

Le granulomètre utilisé dans le cadre de notre étude est à même de réaliser une mesure complète du spectre granulométrique toutes les 3 minutes, pour mener par exemple à une moyenne  $\frac{1}{4}$  horaire.

Cette moyenne  $\frac{1}{4}$  horaire nous fournit d'une part la concentration en nombre totale dans la gamme 10-500 nm, et d'autre la concentration en nombre sur 64 canaux. L'exploitation d'un tel appareil nous amène donc à gérer une quantité très importante de données, ces dernières ne se présentant pas sous une forme aisément communicable.

Par ailleurs, il est fréquemment postulé qu'une distribution granulométrique peut être reconstituée à partir de populations indépendantes, existant sous forme de log-normales.

Nous avons cherché à vérifier cette hypothèse dans le cas des campagnes de mesure du LCSQA ; en effet, une telle discrimination permettrait :

- de faciliter la compréhension de cet aérosol submicronique en ayant accès à une description plus riche ;
- d'ouvrir la voie à un mode de représentation et donc de communication intelligible pour le grand public.

### **4.2 LE LOGICIEL GA3**

Un algorithme a été développé spécifiquement en vue de répondre à ces objectifs, sur la base de travaux de recherche antérieurs de l'INERIS [Geofroy, 2004].

Il répond au nom de gA3 pour « genetic Algorithm for Aerosol Analysis » (Analyse de données Aérosol par algorithme génétique ).

Cet algorithme consiste à :

- postuler qu'une distribution en taille (mesurée) peut être reconstruite à l'aide d'une somme de fonctions log-normales,
- introduire initialement un ensemble de log-normales, dont le nombre (en l'occurrence 3) et les caractéristiques sont arbitraires,
- puis à mener un ajustement de manière stochastique, visant à rapprocher au maximum données reconstruites et mesure.

Un test du  $\chi^2$  permet de quantifier la convergence entre données issues de la mesure, et données reconstruites.

Enfin, un module d'extraction permet de mettre à disposition de l'utilisateur l'ensemble des données, sous une forme conviviale.

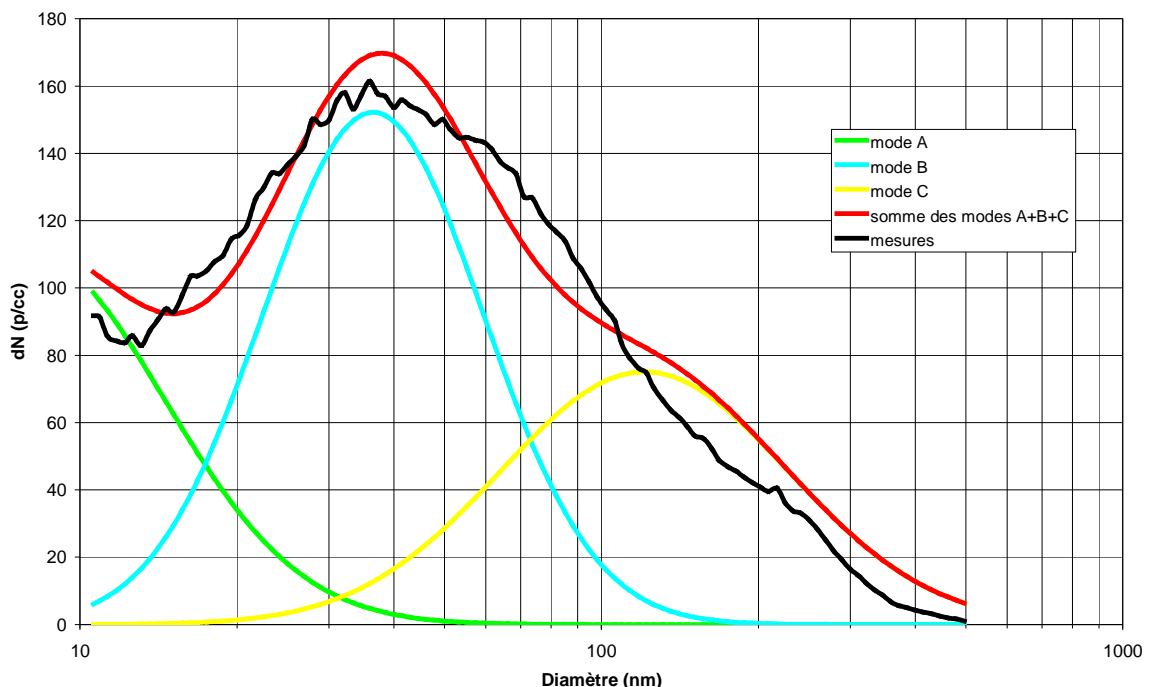
### 4.3 EXEMPLE

La figure 4.a et le tableau 4.a montrent un **exemple** de résultat, à savoir l'analyse de la moyenne horaire observée sur le site de Gennevilliers, le dimanche 24 avril 2005 de 14h à 15h.

Un travail mené par ailleurs a consisté à jauger de manière visuelle tout un ensemble de spectres reconstruits. Ce travail semble indiquer qu'une valeur du  $\text{Khi}^2$  inférieure à 50 garantit la qualité de l'ajustement, les valeurs supérieures nécessitant une vérification.

L'exemple considéré ici est caractérisé par une valeur  $\text{Khi}^2 = 2$ , nettement inférieure à 50 et donc tout à fait satisfaisante.

Si nous comparons sur la figure 4.a les mesures (courbe noire) avec le résultat total de la reconstruction (courbe rouge), nous relevons effectivement une forme globale tout à fait correcte.



*Figure 4.a : exemple de granulométrie mesurée et reconstruite – site de Gennevilliers, dimanche 24 avril 2005, de 13 à 14h.*

Par ailleurs, nous observons très clairement trois modes indépendants (figure 4.a et tableau 4.a) :

- Le premier, « mode A », centré sur 8 nm, n'est observé que partiellement ;
- Le second, « mode B », est centré sur la même zone que le mode dominant la distribution en taille totale (en l'occurrence, 36 nm) ;
- Enfin, le dernier mode « accompagne » la diminution de population vers les diamètres les plus importants (mode « C », centré sur 120 nm).

L'utilisation de ce logiciel sera discutée plus avant dans le chapitre « suivi temporel ».

	<b>Mesure</b>	<b>Reconstruction</b>
<b>Khi<sup>2</sup></b>		2
<b>Concentration en nombre</b>	9 600 p/cc	9 950 p/cc

	<b>Diamètre moyen</b>	<b>Concentration (p/cc)</b>
<b>Mode A</b>	8 nm	1 500
<b>Mode B</b>	36 nm	5 150
<b>Mode C</b>	120 nm	3 300

*Tableau 4.a : données relatives à la reconstruction de la granulométrie du 24/04/05 13-14h.*

## **5. SUIVI DANS LE TEMPS**

### **5.1 PRINCIPE : RAPPEL**

Le principe de cette activité consiste à mener de manière systématique, chaque année, une campagne de mesure sur le même site et à la même période.

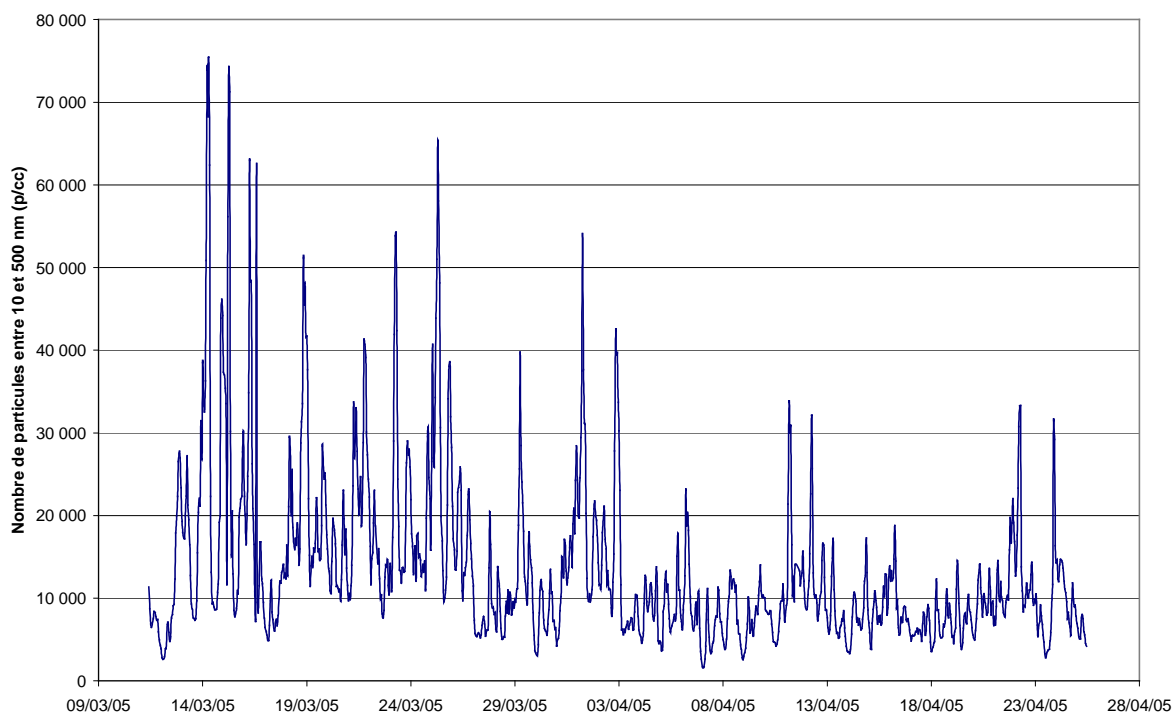
L'objectif est, sans avoir recours à un monitoring permanent, de disposer d'une information qui s'en approche et permette ainsi de déterminer la stabilité ou l'évolution des caractéristiques de l'aérosol au cours du temps.

Le site est celui de la station de surveillance urbaine de fond de Gennevilliers (AIRPARIF), site ayant fait l'objet d'une validation spécifique [Le Bihan 2004], et pour lequel les résultats de trois campagnes hivernales sont désormais disponibles (2003, 2004, 2005).

### **5.2 RESULTATS DE LA CAMPAGNE 2005**

Le suivi temporel de la concentration en nombre, ainsi que le diagramme de fréquence cumulée, sont présentés sur les graphiques 5.1 et 5.2.

Nous observons des caractéristiques tout à fait classiques, comme le montre la comparaison avec les résultats des années précédentes, comparaison effectuée au sein du chapitre 5.3.



*Figure 5.1 : Suivi temporel de la concentration en nombre entre 10 et 500 nm, base horaire.*

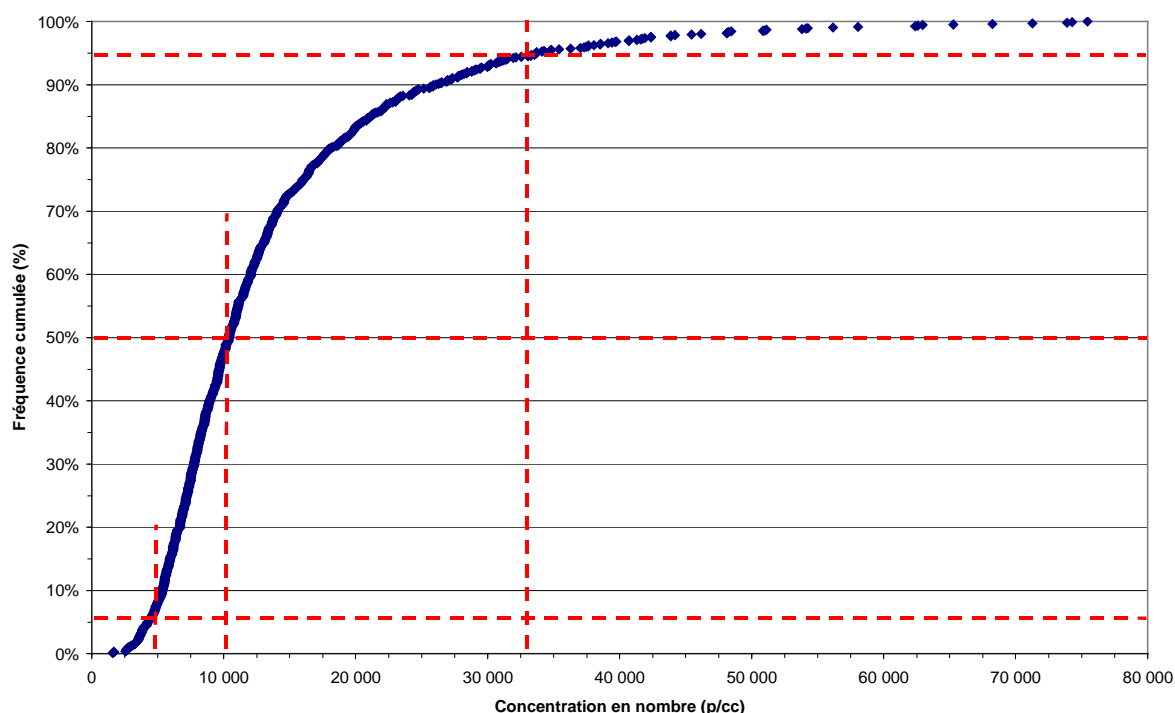


Figure 5.2 : diagramme de fréquence de la concentration totale.

## 5.3 COMPARAISON 2003-2005

### 5.3.1 CONCENTRATION EN NOMBRE ET MASSE :

Un tableau comparatif (tableau 5.1) résume les résultats obtenus en terme de concentration massique et numérique, pour les trois campagnes hivernales sur le site de référence.

De manière générale, les maxima ont été observés en 2003, avec par exemple environ +50 % en moyenne sur le PM<sub>10</sub> (50°C), + 30 % sur le PM<sub>2,5</sub> (50°C). Cette domination de l'année 2003 n'est pas surprenante car cette campagne a été marquée par un nombre important de situations anticycloniques avec pics de pollution.

Cependant la hiérarchisation varie selon le type de concentration considéré : en effet, si les campagnes 2004 et 2005 sont extrêmement proches côté PM (PM : 2004  $\cong$  2005 ), en ce qui concerne la concentration en nombre les résultats de l'année 2005 viennent se placer entre les années précédentes (N : 2003 > 2005 > 2004).

### 5.3.2 CORRELATIONS

Le tableau 5.2 rassemble les valeurs du coefficient de corrélation, pour l'ensemble des paramètres et l'ensemble des campagnes hivernales.

Nous confirmons statistiquement des caractéristiques déjà abordées dans les précédents rapports :

- Domination de la concentration en nombre par les particules ultrafines (N1 / SMPS : 0.99) ;

- Lien entre Nombre / masse, à savoir entre PM10 50°C et N1 : corrélation « modérée » de 0,4 à 0,6 ;
- Très bonne corrélation entre oxydes d'azote et nombre (SMPS/NO : de 0.7 à 0.8 ; SMPS/NO2 : de 0,64 à 0,88) ;
- Anti-corrélation entre ozone et particules (-0,5 à -0,7).

Ces résultats confirment donc le comportement spécifique des particules ultrafines par rapport à la concentration massique, et confirment également la corrélation avec les oxydes d'azote ce qui souligne le rôle joué par les sources de combustion (trafic, chauffage urbain).

Moyennes horaires						
Polluants particulaires et gazeux	Percentiles		Valeurs extrêmes et médiane			Moyennes
	5%	95%	Minimum	Médiane	Maximum	
<b>2005</b>						
N1+N2 = Concentration en nombre entre 10 et 500 nm (p/cm <sup>3</sup> )	4 000 *	34 000 *	1 600 *	10 000 *	75 000 *	13 500 *
Concentration en nombre fournie par l'APS [ < 523 - 20 000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	12	315	7	77	540	109
N3 = Concentration en nombre entre [ 542 - 20 000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	2	81	1	9	200	20
PM10 (µg/m <sup>3</sup> )	6	54	0.9	17	139	22
PM2,5 (µg/m <sup>3</sup> )	4	35	0.5	12	60	15
<b>2004</b>						
N1+N2 = Concentration en nombre entre 10 et 500 nm (p/cm <sup>3</sup> )	2 000 *	20 000 *	800 *	7 000 *	50 000 *	9 000 *
Concentration en nombre fournie par l'APS [ < 523 - 20 000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	10	341	3	70	522	120
N3 = Concentration en nombre entre [ 542 - 20 000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	2	75	1	9	139	22
FDMS PM10 (µg/m <sup>3</sup> )	5	70	1	22	86	30
PM10 (µg/m <sup>3</sup> )	7	53	0.1	18	133	22
PM2,5 (µg/m <sup>3</sup> )	3	35	0.2	11	77	14
<b>2003</b>						
N1+N2 = Concentration en nombre entre 10 et 500 nm (p/cm <sup>3</sup> )	5 000 *	35 000 *	1 500 *	13 000 *	83 500 *	15 000 *
FDMS PM10 (µg/m <sup>3</sup> )	7	103	1	32	183	41
PM10 (µg/m <sup>3</sup> )	10	85	0.7	25	160	31
PM2,5 (µg/m <sup>3</sup> )	5	45	0.7	15	80	19

Tableau 5.1 : mesures SMPS et PM – comparaison des indicateurs entre les années 2003, 2004 et 2005.

R	APS	N1	N2	N1+N2	N1+N2+N3	FDMS (1)	TEOM PM10	TEOM PM2.5	NO2	NO	O3
APS 2005 [ < 523 - 20 000 nm]	1	0.37	0.61	0.43	0.43		0.64	0.73	0.42	0.30	-0.52
N3 2005 [ 542 -20 000 nm]	0.90	0.26	0.49	0.32	0.32		<b>0.53</b>	<b>0.64</b>	0.27	0.22	-0.43
SMPS 2005 [ 10 - 500 nm]	0.43	<b>0.99</b>	0.91	1	1		0.67	0.66	<b>0.77</b>	<b>0.72</b>	-0.58
N1 2005 [ 10 - 100 nm]	0.37	1	0.85	0.99	0.99		<u>0.61</u>	0.59	0.75	0.69	-0.55
N2 2005 [ 100 - 500 nm]	0.61	0.85	1	0.91	0.91		0.79	0.83	0.77	0.74	-0.58
APS 2004 [ < 523 - 20 000 nm]	1	0.50	0.57	0.53	0.53	0.89	0.22	0.37	0.57	0.36	-0.67
N3 2004 [ 542-20 000 nm]	0.91	0.39	0.45	0.41	0.41	<b>0.76</b>	<b>0.17</b>	<b>0.30</b>	0.46	0.25	-0.55
SMPS 2004 [ 10 - 500 nm]	0.53	<b>0.99</b>	0.91	1	1	0.54	0.41	0.37	<b>0.88</b>	<b>0.81</b>	-0.73
N1 2004 [ 10 - 100 nm]	0.50	1	0.84	0.99	0.99	0.47	<u>0.41</u>	0.37	0.86	0.77	-0.73
N2 2004 [ 100 - 500 nm]	0.57	0.84	1	0.90	0.91	0.72	0.36	0.31	0.83	0.86	-0.64
SMPS 2003 [ 10 - 500 nm]		<b>0.99</b>	0.87	1		0.42	0.51	0.58	<b>0.64</b>	<b>0.73</b>	-0.50
N1 2003 [ 10 - 100 nm]		1	0.80	0.99		0.35	<u>0.45</u>	0.50	0.60	0.70	-0.47
N2 2003 [ 100 - 500 nm]		0.80	1	0.87		0.63	0.65	0.75	0.67	0.72	-0.52

Tableau 5.2 : étude de corrélation entre différents paramètres. Base horaire.

(1) :



### 5.3.3 PROFIL JOURNALIER :

La figure 5.3 présente le cycle journalier moyen de la concentration en nombre, du lundi au vendredi ; les trois campagnes hivernales sont présentées.

Le léger pic observé vers 15h pour le profil 2005 est dû à un cas particulier (pic aigu, sur un seul prélèvement).

Nous relevons de manière générale une grande similarité entre les trois années, tout en retrouvant la hiérarchisation évoquée précédemment.

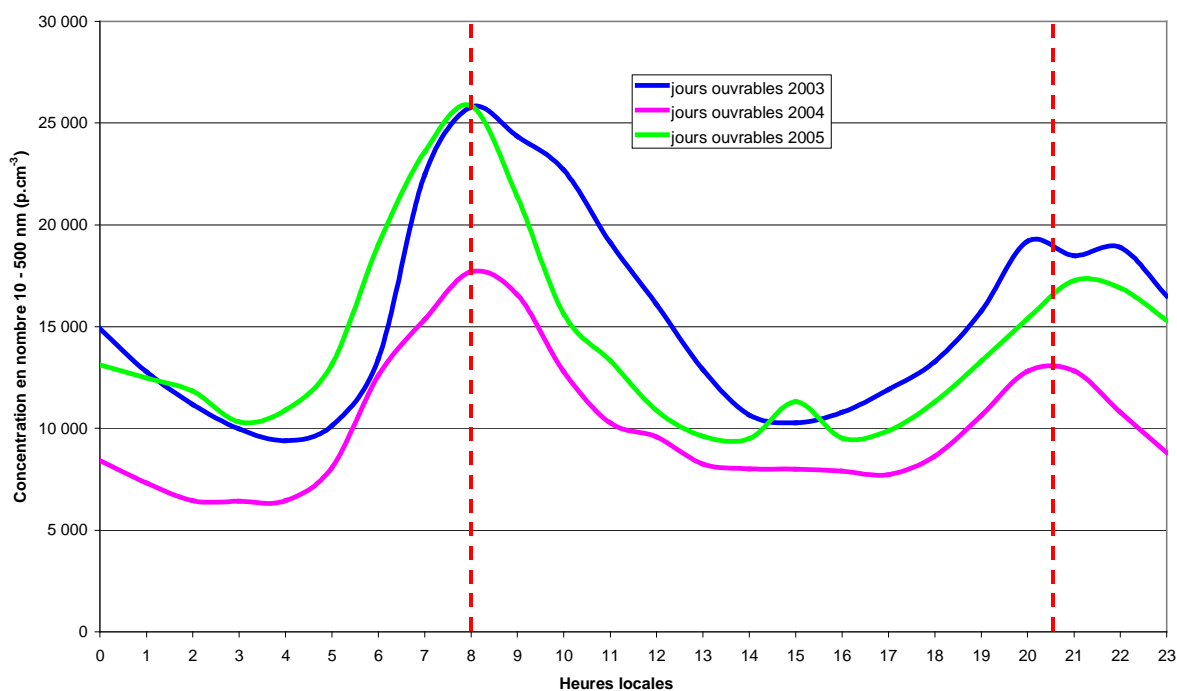


Figure 5.3 : profil journalier moyen des campagnes 2003 à 2005, pour les jours de semaine.

### 5.3.4 DISTRIBUTION EN TAILLE

Une comparaison de la distribution en taille mesurée lors des trois campagnes hivernales, est effectuée sur les figures 5.4 et 5.5 ; il s'agit du même graphique, à ceci près qu'une échelle logarithmique est utilisée en ordonnée pour le second.

Nous observons dans tous les cas une distribution unimodale, dominée par la fraction ultrafine. La hiérarchisation observée sur la concentration en nombre, se retrouve ici au niveau du pic.

La finesse de ce dernier, ainsi que son diamètre médian (2003, 2004, 2005 : 32, 30, et 40 nm) présentent quelques différences.

La partie du spectre située au-dessus de 500 nm semble très stable (2004, 2005).

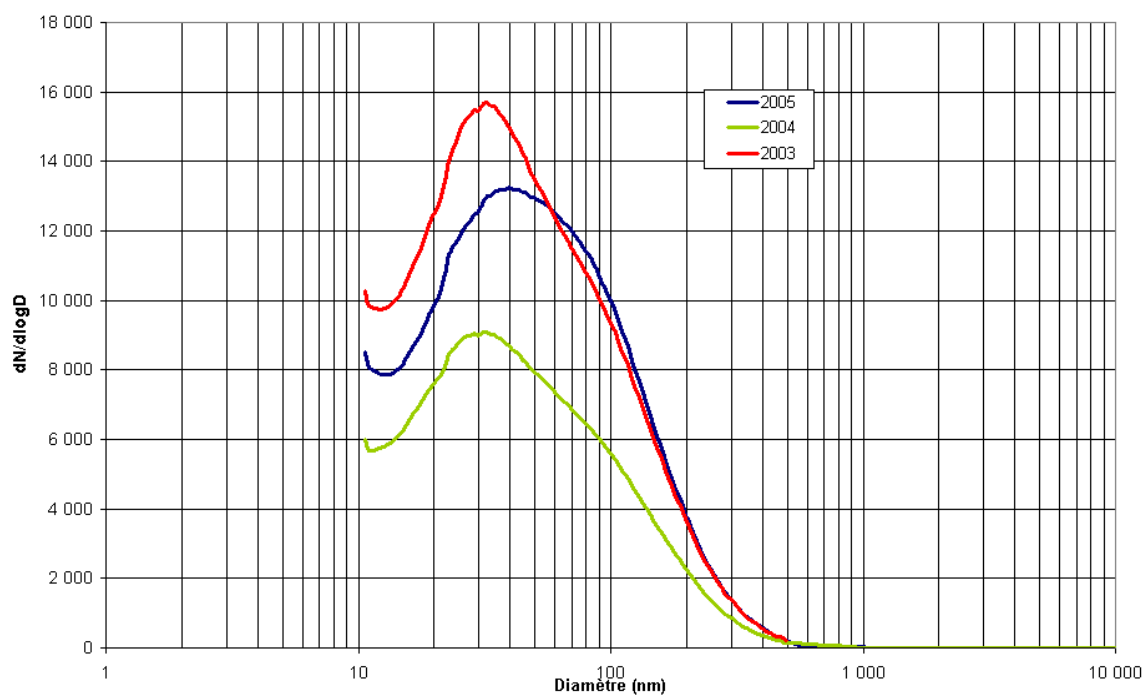


Figure 5.4 : distribution en taille moyenne sur la campagne 2005, comparée aux deux années précédentes.

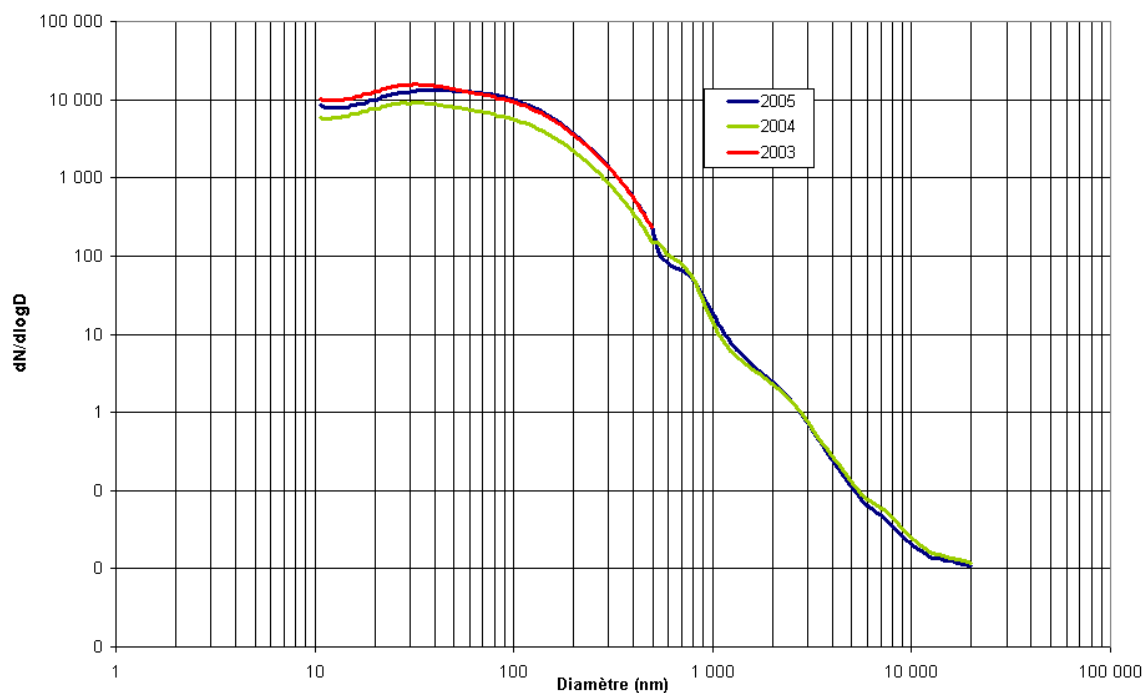


Figure 5.5 : distribution en taille moyenne sur la campagne 2005, comparée aux deux années précédentes. – échelle log en ordonnée.

## 5.4 VISUALISATION A L'AIDE DU LOGICIEL GA3

### 5.4.1 TEST DU KHI2 :

Comme nous l'avons vu, ce paramètre a pour objectif de fournir un indice de qualité quant à la convergence entre les données brutes et les données reconstruites.

Sur 1072 valeurs, une seule est supérieure à 50 ( $Khi^2=77$ ) et inférieure à 100 (Figure 5.6).

#### Etude d'un cas particulier

Les résultats associés à cette valeur spécifique de 77 sont présentés sur la figure 5.7 et dans le tableau 5.3. Les performances à la fois en terme graphique et en terme numérique nous semblent acceptables : si la hauteur du spectre reconstruit n'est pas suffisant, la forme générale est bien respectée avec un ordre de grandeur correct pour le diamètre médian ; par ailleurs, la concentration en nombre est estimée à 15 % près, ce qui est une très bonne performance.

#### Conclusion :

La base de données hivernale 2005 a été traitée par le logiciel g3A, et respecte dans sa totalité le test de convergence.

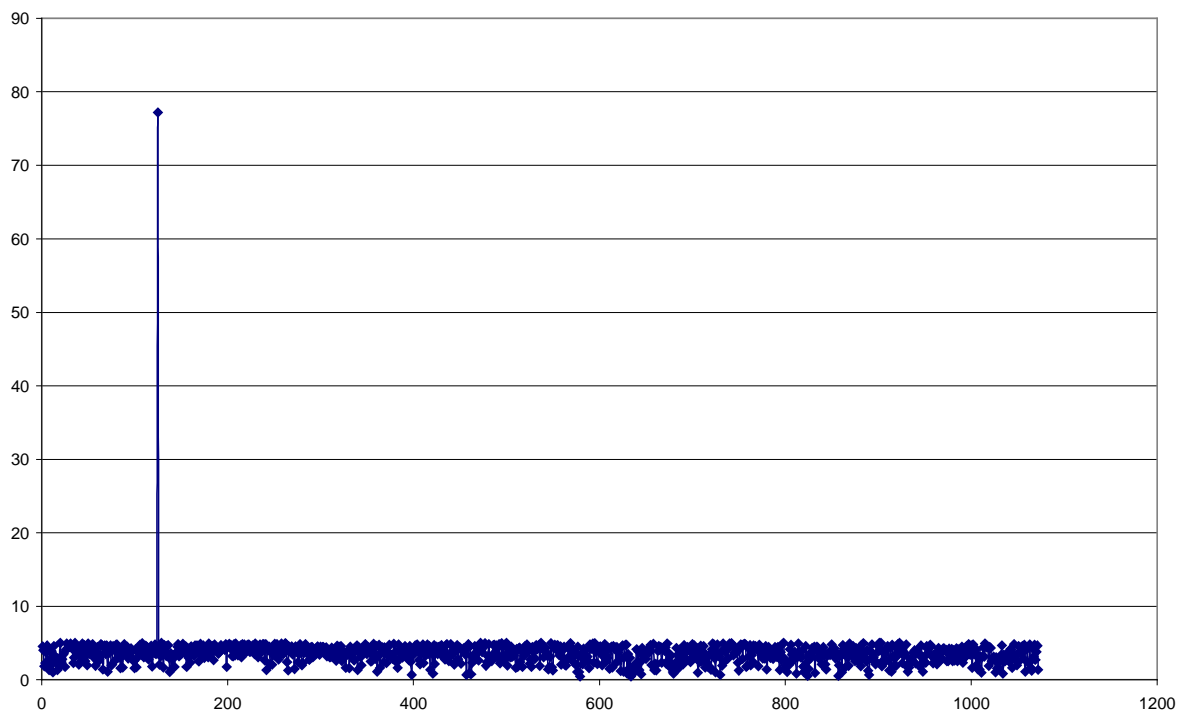


Figure 5.6 : application de gA3 sur les observations horaires Gennevilliers 2005 – test du  $Khi^2$ .

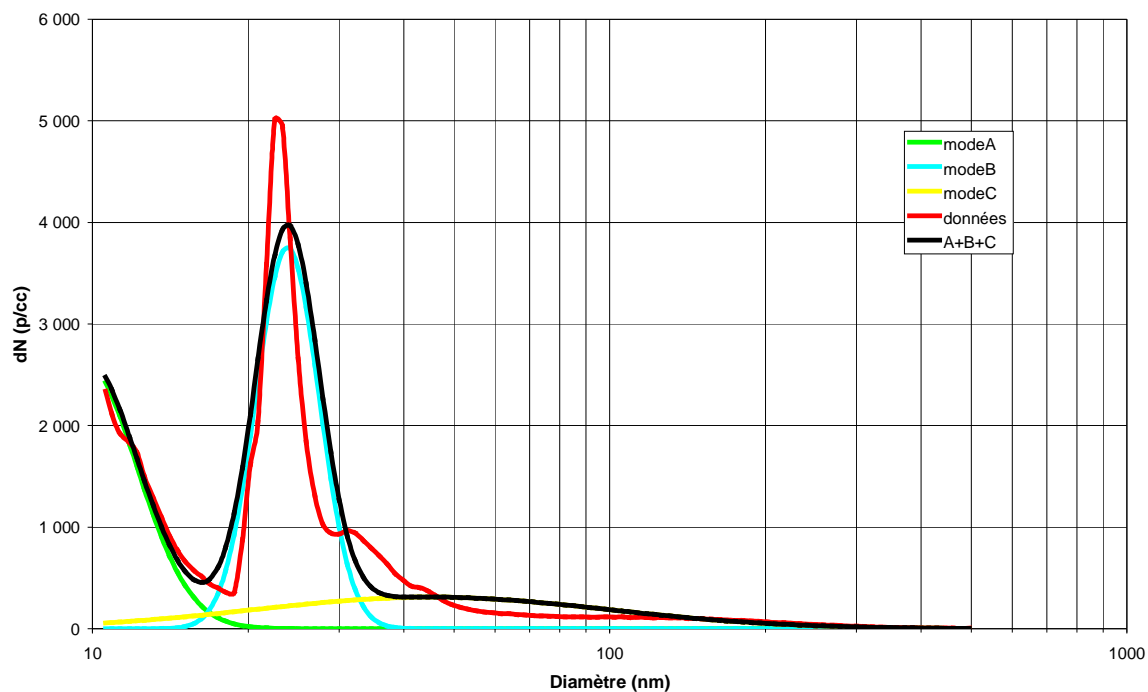


Figure 5.7 : observation de la distribution en taille associée à un Khi2 de 77 (cas le moins favorable).

	Mesure	Reconstruction
Khi <sup>2</sup>		77
Concentration en nombre	62 600 p/cc	70 000 p/cc

	Diamètre moyen	Concentration (p/cc)
Mode A	10 nm	16 000
Mode B	24 nm	37 500
Mode C	45 nm	16 500

Tableau 5.3 : données relatives à la reconstruction de la granulométrie du 16/03/05 14-15h.

## 5.4.2 UTILISATION DE GA3 SUR LA BASE HIVERNALE 2005 : RESULTATS

La figure 4.a offre une visualisation complète de la reconstruction d'une distribution en taille, à l'aide de plusieurs log-normales.

### Concentration totale en nombre

La figure 5.8 permet la comparaison entre concentration mesurée et reconstruite : nous relevons d'excellents résultats puisque la régression linéaire qui est établie entre ces deux variables montre une pente de 1 (différence de 4 %), et un coefficient de détermination  $R^2$  proche de 1.

Le logiciel de reconstruction permet donc de retrouver à 4 % près, la concentration en nombre de départ.

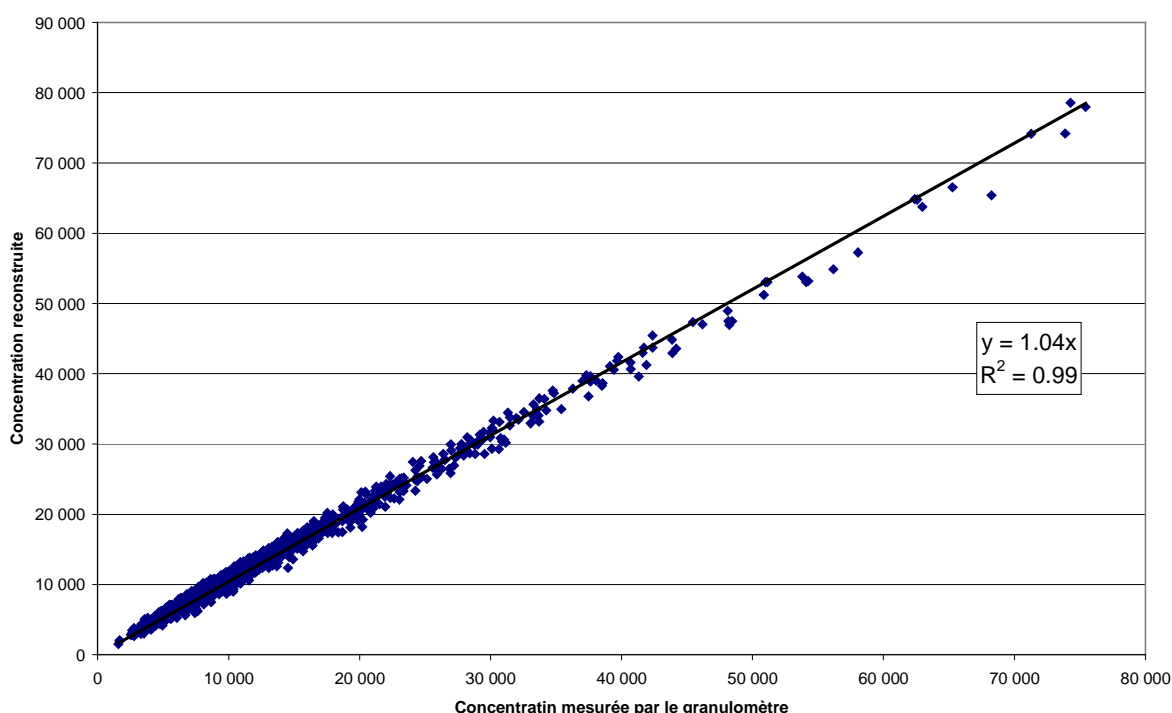


Figure 5.8 : comparaison de la concentration en nombre mesurée, et reconstruite. Base horaire Gennevilliers hiver 2005.

### Positionnement en terme de diamètre des modes individuels

La figure 5.9 permet de visualiser le diamètre médian autour duquel se situe chaque mode, ceci pour l'ensemble des données de la base hivernale 2005.

Par ailleurs, le tableau 5.4 fournit la valeur moyenne de ces trois diamètres médians.

Nous relevons tout d'abord le **mode A** : son diamètre médian est particulièrement petit (moyenne de 6,5 nm). Le graphique 5.9 montre qu'il se situe principalement entre 4 et 10 nm, ce qui le place en dehors de la gamme de mesure du SMPS (> 10 nm) .

De ce fait, il est important de noter que les caractéristiques de ce mode sont estimées uniquement à partir de la partie droite de la log-normale se situant dans la gamme de mesure du SMPS. Il est également important de préciser que la

concentration qui lui est associée est le sous-ensemble situé dans cette gamme de mesure du SMPS .

La mise en évidence d'une contribution récurrente dans cette partie non-explorée pose la question de l'intérêt d'une extension de la gamme de mesure dans cette direction.

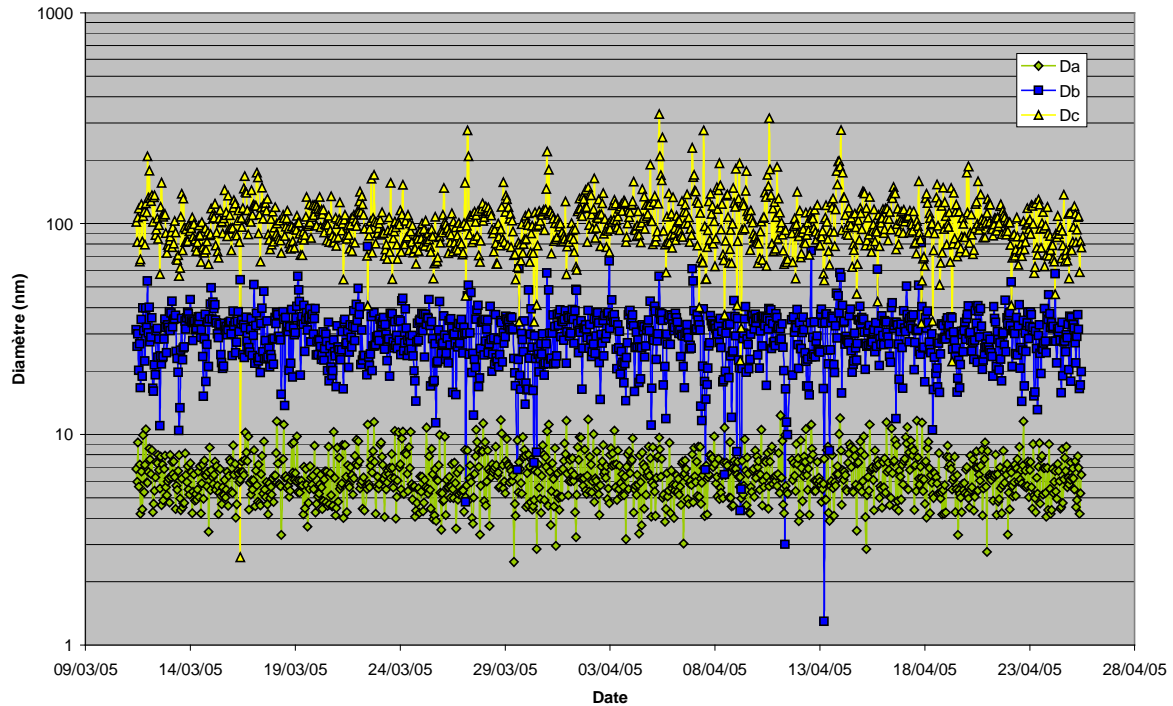


Figure 5.9 : diamètre central de chaque mode (base horaire), au cours du temps.

Mode :	A	B	C
Diamètre Central moyen (nm) :	6,5	29	101
Ecart-type relatif :	25 %	29 %	30 %

Tableau 5.4 : Valeur moyenne du diamètre autour duquel est centré chaque mode.

Le **mode B** est à coup sûr un contributeur majeur de cette reconstruction : en effet, son diamètre médian correspond au pic de la distribution en taille globale. La valeur moyenne de ce diamètre médian est de 29 nm, ce qui correspond aux caractéristiques de la distribution moyenne 2005. Le graphique 5.9 montre qu'il se situe généralement entre 20 et 40 nm.

Le **mode C** reste globalement dans la gamme des particules ultrafines puisque son diamètre moyen est de 101 nm. Il se situe généralement entre 70 et 150 nm.

Lors du développement du logiciel de reconstruction, nous avons souhaité étendre notre travail à la gamme de mesure assurée par le granulomètre **APS**. Cette zone est caractérisée de manière systématique par une traîne, issue de la gamme ultrafine et diminuant vers le micron et au-delà (cf. Figures 5.4 et 5.5). Une reconstruction à l'aide d'une ou de plusieurs log-normales n'a pas fonctionné ;

nous avons alors cherché d'autres modes d'expression mathématique, mais sans succès.

### Contribution des différents modes sur la concentration en nombre – cycle journalier

Deux remarques préalables sont à considérer :

- les données APS, caractérisées par un apport marginal sur la concentration en nombre, ne seront pas considérées ici ;
- en ce qui concerne le mode A, seul le nombre de particules inclus dans la gamme d'observation du SMPS (10 – 500 nm) est pris en compte dans l'indicateur Na.

Comme nous pouvons l'observer sur la figure 5.10, les principaux contributeurs sont au nombre de deux, à savoir les modes B et C. La correspondance du mode B avec le pic du spectre granulométrique n'en fait donc pas pour autant le mode « dominant ».

Par ailleurs, la prise en compte du mode A n'est que partielle ; cette contribution (et d'ailleurs la concentration totale en nombre) pourrait augmenter de manière notable si la gamme de mesure était étendue dans la gamme nanométrique.

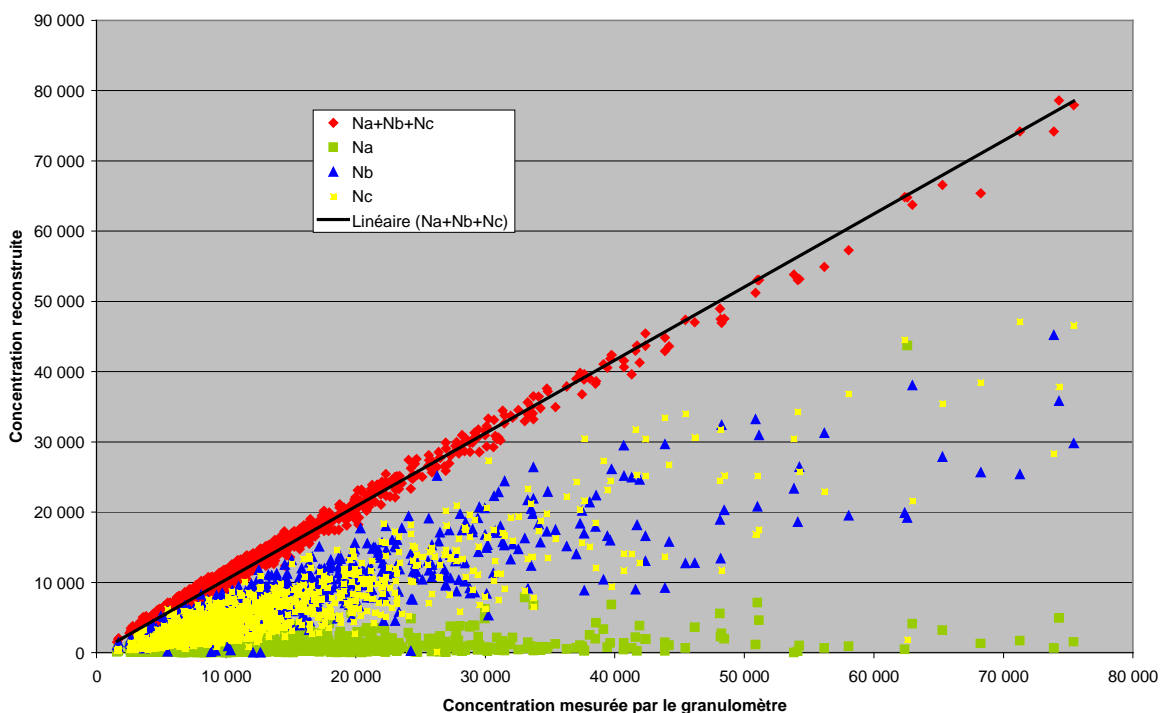


Figure 5.10 : visualisation de la concentration de l'ensemble des 3 log-normales, en fonction de la concentration totale mesurée par le SMPS.

Nous retrouvons cette répartition au niveau du cycle journalier moyen (lundi-vendredi), sur la figure 5.11.

Il est intéressant de noter que l'artefact de 15h (dû à un cas particulier) se situe dans les tailles les plus faibles.

Plus généralement, si nous observons une grande similarité entre les concentrations des modes B et C, il est intéressant de noter l'existence d'un décalage au niveau du pic matinal : ce point mériterait d'être précisé au niveau des campagnes précédentes. En effet, si cette observation se trouvait confirmée, elle pourrait trouver une explication dans le fait que le mode C concerne des diamètres supérieurs au mode B, nous renvoyant vers une image assez courante du grossissement des particules en fonction du temps.

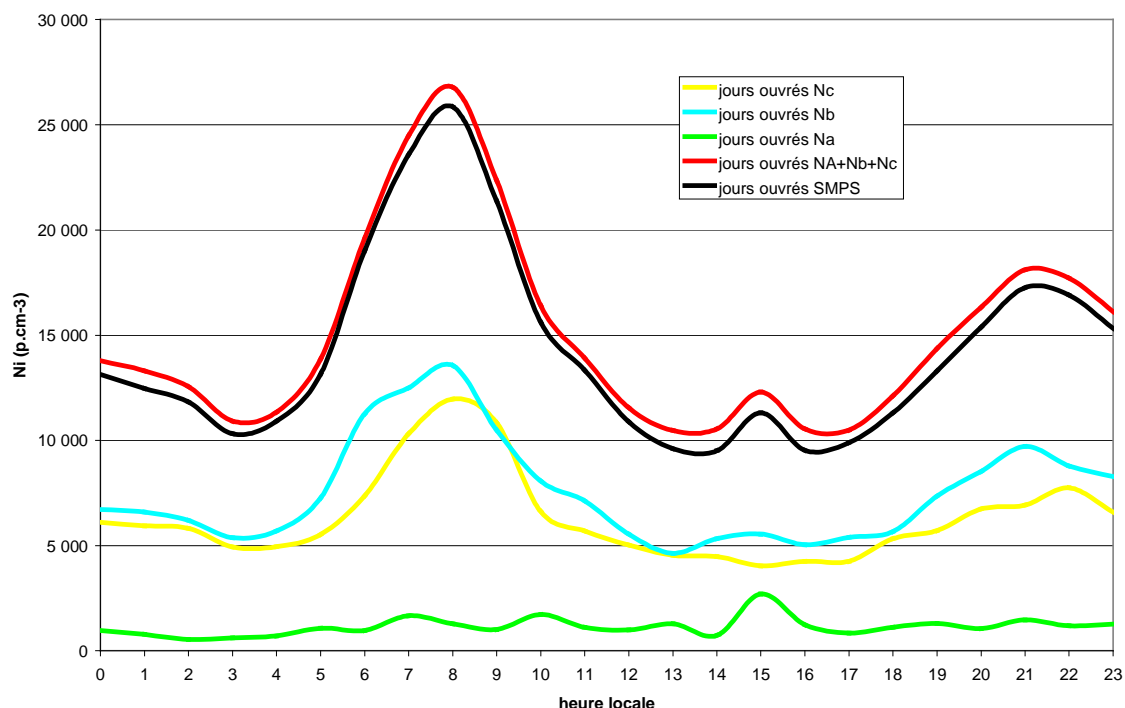


Figure 5.11 : cycle journalier de la concentration en nombre des différents modes.

## 5.5 CONCLUSION

Les résultats de la campagne de mesure hivernale 2005 viennent s'ajouter aux données des campagnes 2003 et 2004.

Ils confirment les résultats des années précédentes. Nous disposons ainsi d'une bonne connaissance de la gamme de variabilité de différents paramètres.

Un outil de reconstruction, le logiciel gA3, a été développé spécialement pour traiter ces données, son objectif étant de savoir si des modes individuels récurrents pouvaient être rencontrés dans ce type de conditions.

Comme nous l'avons vu, il a été d'une part possible de mener à terme le développement d'un tel outil, et il a permis d'autre part de confirmer l'existence de ces sous-groupes de particules, au nombre de trois. Le traitement de la base de données a permis de caractériser ces populations (diamètre, concentration) et a mis en évidence leur stabilité dans le temps. Cet apport est important tant en terme de connaissance de l'aérosol, qu'en terme de visualisation simplifiée de celui-ci dans une perspective telle que celle de la surveillance.



L'utilisation de cet outil demande à être poursuivie, pour en bénéficier sur l'ensemble des données et des sites, mais aussi pour mieux évaluer sa répétabilité.

## **6. TYPOLOGIE**

### **6.1 CAMPAGNE DE MESURE SUR UN SITE OUVERT SOUS INFLUENCE AUTOMOBILE**

Une campagne de mesure a été réalisée en novembre 2004, en collaboration avec l'Ecole des Mines de Douai et en l'occurrence dans la station de mesure de Douai.

En terme de typologie, ce site est qualifié « d'ouvert à influence automobile » ; il est en effet situé en zone urbaine à faible densité, à proximité d'une route, sans qu'il y ait par ailleurs de bâtiment de taille importante pouvant jouer un rôle de confinement.

Le principe de cette campagne a été, d'une part, d'appliquer la procédure d'étude telle que définie sur le site de référence (chapitre 6.1.1), et d'autre part de mener une action complémentaire, à savoir la mise en œuvre d'un granulomètre –l'ELPI- de conception différente de celle utilisée jusqu'ici (SMPS) (chapitre 6.1.2).

#### **6.1.1 OBSERVATIONS SMPS-APS**

##### **Concentration en nombre et en masse**

Les principaux résultats sont présentés sur les figures 6.1 et 6.2 ainsi que dans les tableaux 6.1 et 6.2. Une comparaison est systématiquement proposée avec la campagne hivernale 2005 de Gennevilliers.

Comme nous pouvons le constater, si les moyennes massiques PM<sub>2,5</sub> sont comparables, nous relevons un écart notable en ce qui concerne la concentration en nombre, avec une exposition nettement supérieure sur le site de Douai. La concentration en particules ultrafines (N<sub>1</sub>) passe ainsi de 13 500 p/cc sur le site de fond parisien, à une concentration de 22 300 p/cc.

Considérons à présent le cycle journalier moyen en semaine (figure 6.2) : si nous relevons effectivement une concentration supérieure à Douai lors des heures de pointe et en milieu de journée, il semble bien que le fond urbain nocturne soit plus important dans l'agglomération parisienne.

Par ailleurs, les 2 pics journaliers sont plus éloignés l'un de l'autre sur le site urbain de fond de Gennevilliers.

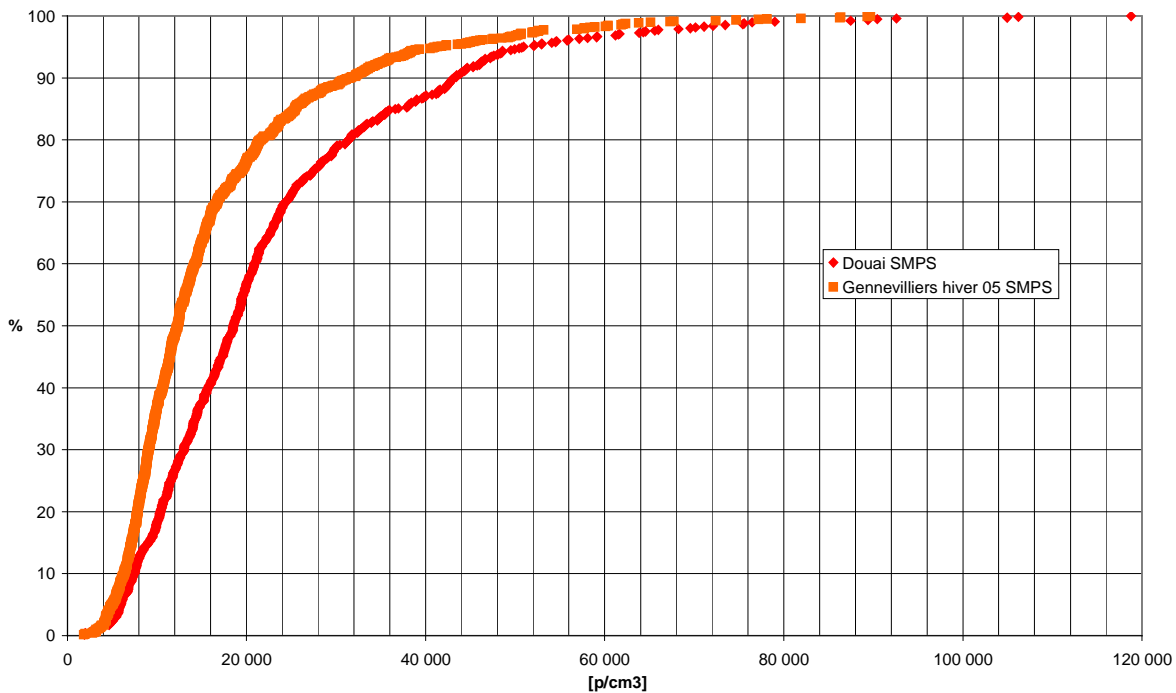


Figure 6.1 : campagne de Douai – SMPS - fréquence cumulée et comparaison avec le site de référence.

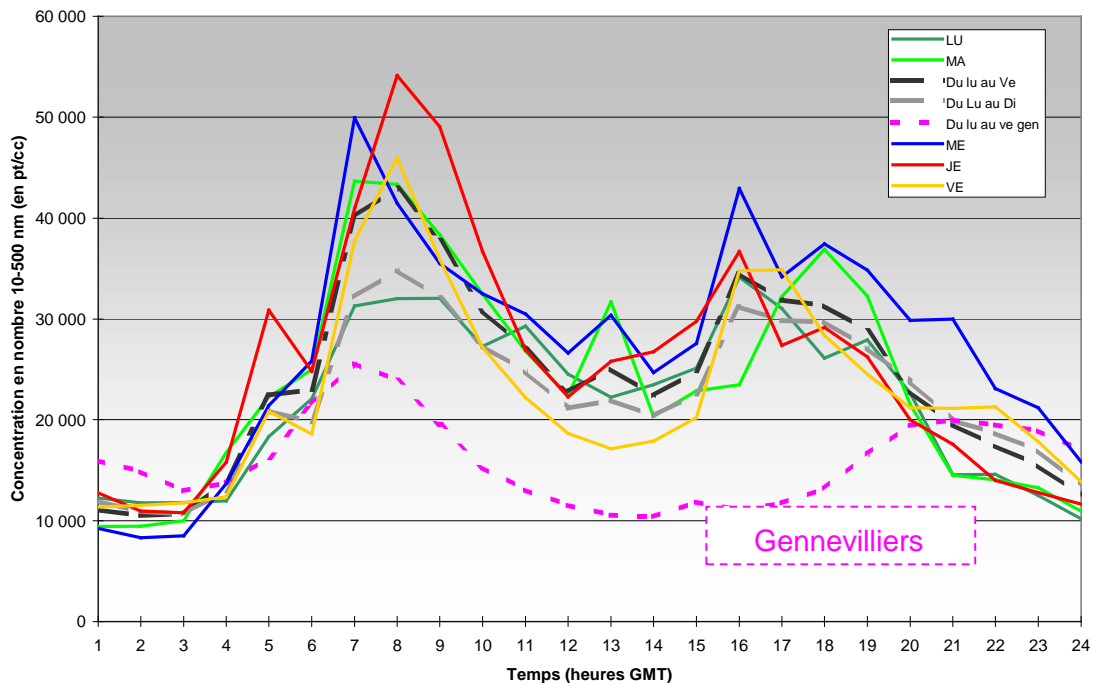


Figure 6.2 : Cycle moyen journalier (lundi-vendredi).

Moyennes horaires						
Polluants particulaires et gazeux	Percentiles		Valeurs extrêmes et médiane			Moyennes
	5%	95%	Minimum	Médiane	Maximum	
<b>DOUAI</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	5 982	50 935	1 921	18 568	118 776	22 299
N3 = C [ 500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	4	82	0	15	148	29
N' = C [750 - 15000 nm] (p/cm <sup>3</sup> ), compteur grimm	3	8	2	4	10	5
N'' = C[ 770 - 14860 nm] (p/cm <sup>3</sup> ), APS	2	31	0	7	60	10
PM10 SES (en µg/m <sup>3</sup> )	9	56	0.3	22	127	25
PM2,5 (en µg/m <sup>3</sup> )	5	39	1.1	16	94	18
NO (en µg/m <sup>3</sup> )			9	23	383	41
NO <sub>2</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			6	41	92	40
Polluants particulaires et gazeux	Percentiles		Valeurs extrêmes et médiane			Moyennes
	5%	95%	Minimum	Médiane	Maximum	
<b>Gennevilliers hiver 2005</b>						
N1+N2 = Concentration en nombre entre 10 et 500 nm (p/cm <sup>3</sup> )	4 000 *	34 000 *	1 600 *	10 000 *	75 000 *	13 500 *
Concentration en nombre fournie par l'APS [ < 523 - 20 000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	12	315	7	77	540	109
N3 = Concentration en nombre entre [ 542 - 20 000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	2	81	1	9	200	20
PM10 (µg/m <sup>3</sup> )	6	54	0.9	17	139	22
PM2,5 (µg/m <sup>3</sup> )	4	35	0.5	12	60	15

Tableau 6.1 : niveaux de concentration observés lors de la campagne de Douai. Comparaison avec la campagne hivernale 2005.

R	APS	TEOM PM10	TEOM PM2.5	NO2	NO
<b>DOUAI 2004</b>					
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	0.32	<b>0.53</b>	0.59	0.68	<b>0.63</b>
N3 = C [ 500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )		0.79	0.67	0.57	0.58
<b>GENNEVILLIERS 2005</b>					
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	0.32	0.70	0.70	0.73	<b>0.78</b>
N3 = C [ 500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )		0.53	0.64	0.22	0.27

Tableau 6.2 : corrélation entre différents paramètres.

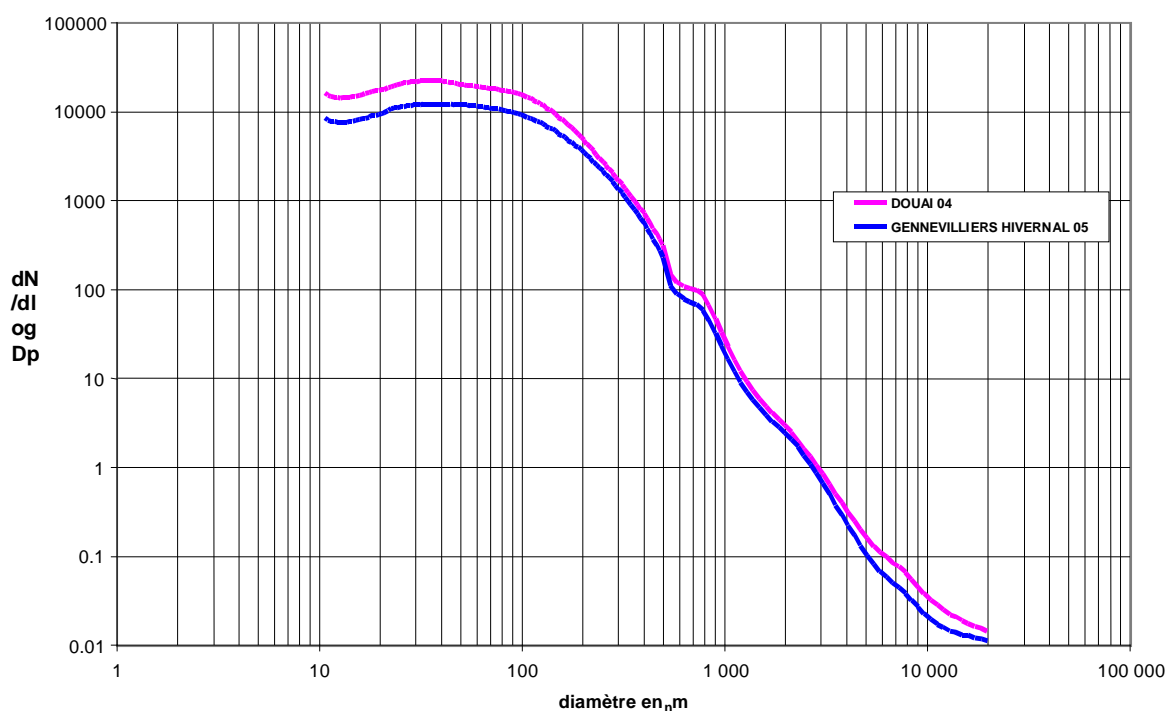
## Distribution en taille

Les figures 6.3 et 6.4 comparent la distribution en taille moyenne lors de la campagne de Douai, et lors de la campagne hivernale 2005 sur le site de référence (AIRPARIF / Gennevilliers / région parisienne).

La vue d'ensemble, obtenue grâce à une échelle logarithmique (figure 6.3) montre une forme de spectre équivalente, avec domination des particules ultrafines. En ce qui concerne les spécificités du spectre mesuré à Douai, nous pouvons résumer la situation en disant que le spectre obtenu à Gennevilliers a été translaté vers le haut, y compris au niveau des particules supérieures au micron.

L'utilisation d'une échelle linéaire en ordonnée permet de mener cette comparaison au niveau du maximum de concentration, à savoir la gamme des particules ultrafines (figure 6.4) : nous observons la parfaite illustration de valeurs en concentration supérieures sur le site de Douai.

Nous relevons un diamètre médian de 30 à 40 nm environ.



*Figure 6.3 : distribution en taille moyenne mesurée lors de la campagne de Douai, et comparée à la moyenne obtenue à Gennevilliers en mars-avril 2005. Echelle log.*

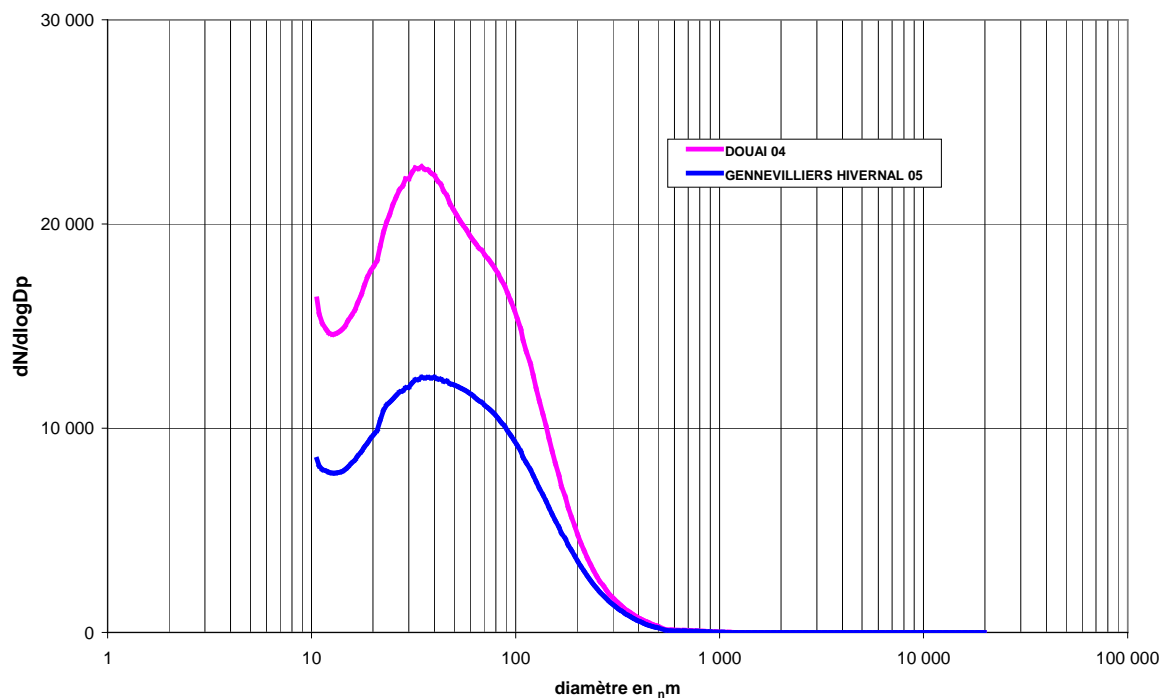


Figure 6.4 : figure identique, mais sans échelle log en ordonnée.

## 6.1.2 COMPARAISON SMPS-APS ET ELPI

### Préambule :

Il est important de noter que dans le domaine de la métrologie des aérosols, le nombre de canaux, et l'écart en taille de chacun de ces canaux, dépend du type de matériel. Par ailleurs, dans certains cas, une loi mathématique définit entre eux les canaux d'un même appareil (exemple : le SMPS) ; dans d'autres cas, ce n'est pas le cas (exemple : l'ELPI).

De ce fait, lorsque l'on souhaite comparer en terme de granulométrie les résultats de différents appareils, il est essentiel de ramener leurs observations à une échelle commune. C'est pourquoi la concentration en nombre observée par chaque canal est normalisée, grâce à une division par un paramètre « dLog D », qui prend en compte la largeur de ce canal.

### Comparaison en nombre :

Comme nous le montre la figure 6.5, nous observons un suivi temporel similaire pour la concentration en nombre mesurée par l'ELPI et celle mesurée par l'ensemble SMPS-APS dans une gamme de taille équivalente (40 nm-10 µm).

La figure 6.6 compare ces deux paramètres. La régression linéaire, forcée à l'origine, montre une pente tout à fait excellente (1,0). Toutefois,

- la dispersion est importante ( $R^2$  de l'ordre de 0,5)
- nous observons une sous-estimation systématique de l'ELPI pour les concentrations inférieures à 10 000 p/cc.

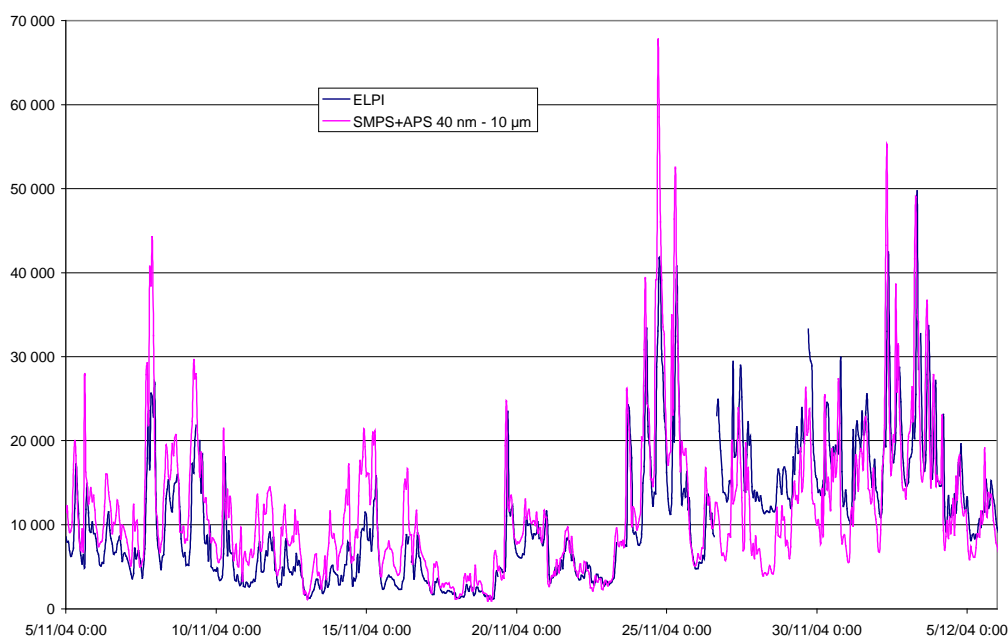


Figure 6.5 : suivi temporel de la concentration en nombre mesurée par l'ELPI et l'ensemble SMPS-APS, dans la gamme 40 nm – 10 µm.

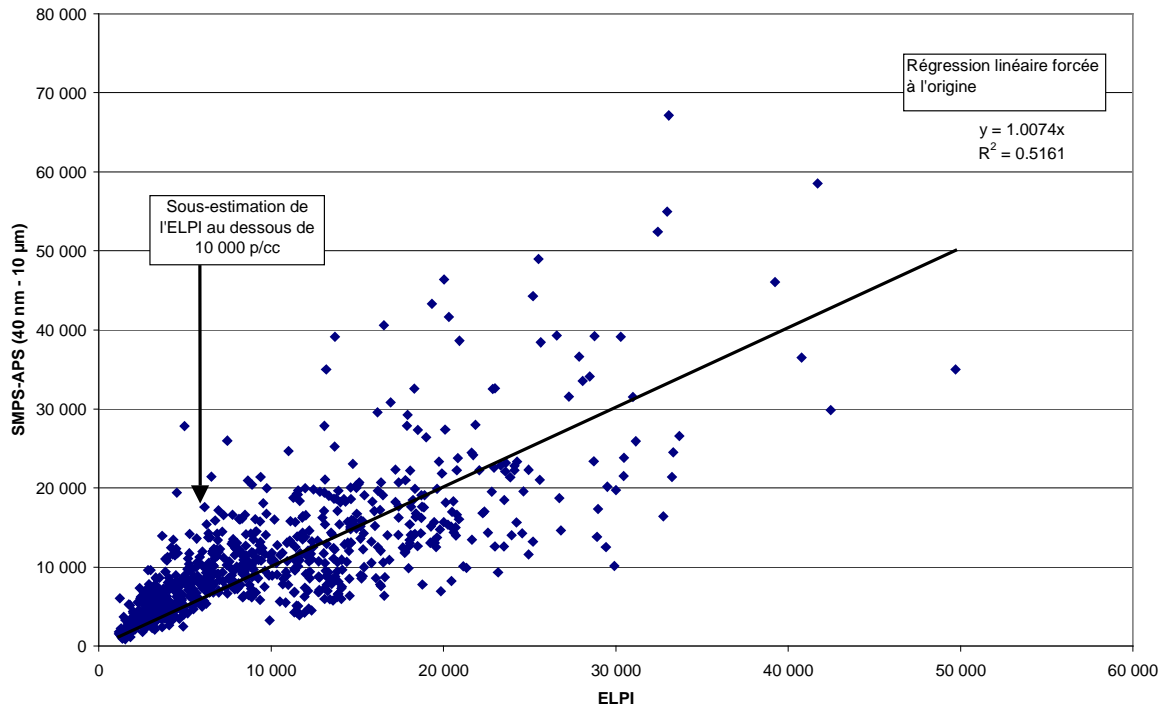


Figure 6.6 : comparaison entre la concentration en nombre mesurée par l'ELPI et celle mesurée par l'ensemble SMPS-APS, dans la gamme 40 nm – 10 µm.

### Comparaison en terme de taille :

Nous comparons ci-dessous la distribution en taille moyenne observée pour l'ensemble de la campagne, d'une part pour l'ensemble SMPS-APS, et d'autre part pour l'ELPI. Cette comparaison est illustrée à l'aide des figures 6.7 et 6.8 .

Il est important de noter que nous considérons ici deux familles d'appareils :

- l'ensemble SMPS-APS : cet appareillage, fabriqué par la société TSI, est le plus ancien et le plus validé des systèmes de mesure dans le domaine. Conçu avant tout pour un travail en laboratoire, il présente 64 canaux de définition entre 10 et 500 nm (SMPS) et 51 canaux entre 0,5 et 20 µm (APS) ; soit un total de 115 canaux. Il est considéré au sein de la communauté, comme une référence.
- L'ELPI, est un appareil plus récent, et jugé très complémentaire. S'il ne présente absolument pas le même niveau de définition (12 étages), il est par contre capable d'assurer une fréquence élevée de mesure (une mesure à la seconde, contre une toutes les 3 minutes pour le SMPS), et rustique, ce qui permet de le mettre en œuvre dans des conditions difficiles (par exemple, mesures en émission industrielle).

Les principales différences sont les suivantes :

- **sur-estimation des mesures ELPI au-dessus de 150 nm** : le principe de fonctionnement de l'ELPI est de mettre en charge l'ensemble des particules, avant de les impacter sur différents étages (premiers étages : les grosses ; derniers étages : les plus petites). Il se trouve 1<sup>er</sup> que les particules ultrafines sont extrêmement plus nombreuses que les particules super-microniques, 2<sup>e</sup> que les particules ultrafines sont sensibles aux pertes par diffusion. En d'autres



termes, si les pertes de particules ultrafines sont minimales au niveau des premiers étages, ce nombre peut cependant devenir très conséquent au vu de la population en particules super-microniques : c'est ce phénomène qui serait à l'origine de la sur-estimation observée au-dessus de 150 nm.

- **sous-estimation des mesures ELPI au-dessous de 150 nm** : de manière générale, le principe de détection de l'ELPI est avant tout efficace pour des concentrations supérieures à 10 000 voire 50 000 p/cc. Les niveaux rencontrés en air ambiant peuvent donc poser problème, et contribuer aux problèmes de décalage que nous traitons ici. Par ailleurs, il est important de noter que les particules émises par les moteurs comprennent une fraction semi-volatile importante ; or, l'impaction a recours à la basse pression pour pouvoir effectuer des mesures au-dessous de 100 nm. Il y a donc risque de perte de particules : ceci est également une explication possible au phénomène de sous-estimation observé au-dessous de 150 nm.

### Conclusion :

La comparaison entre SMPS-APS et ELPI montre une convergence sur les grandes lignes de la distribution en taille, à savoir en terme de concentration en nombre et sur le constat d'une domination de l'aérosol ultrafin.

Toutefois, l'ELPI ne présente pas le même niveau de définition (12 canaux contre 115) ; il fonctionne de manière optimale à des niveaux de concentration un peu plus élevés que ceux rencontrés en air ambiant ; des précisions seraient nécessaires quant à son comportement vis-à-vis d'un aérosol comprenant des composés semi-volatils ; enfin, il serait nécessaire qu'une correction mathématique ou qu'une solution instrumentale interviennent dans le cadre des observations dans la gamme super-micronique, ceci afin de prendre en compte l'interférence issue des pertes par diffusion en particules ultrafines.

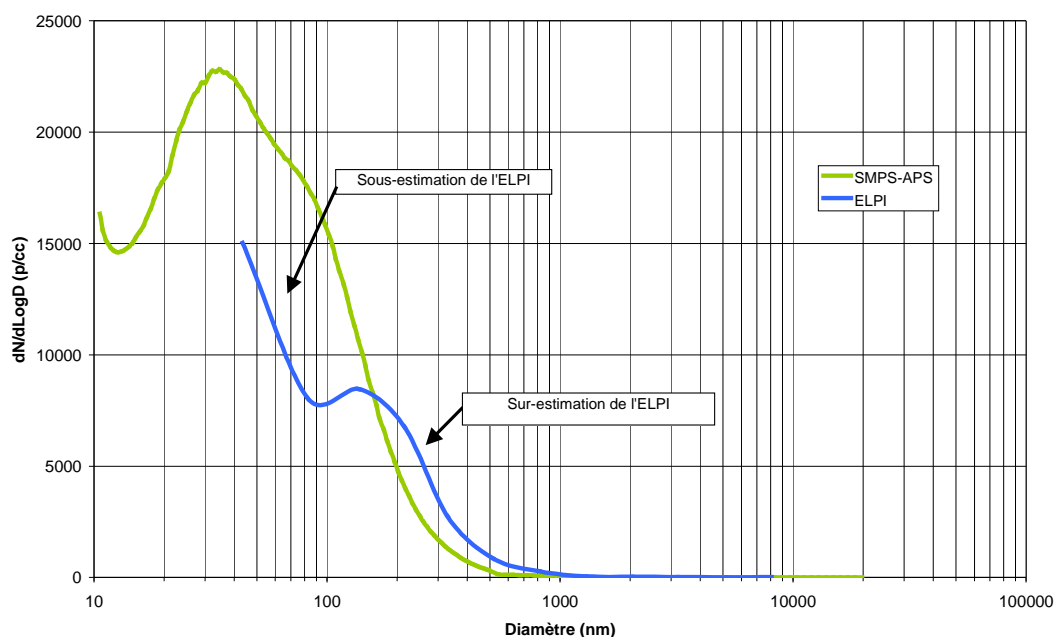


Figure 6.7 : comparaison entre l'ELPI et l'ensemble SMPS-APS ; ordonnée linéaire.

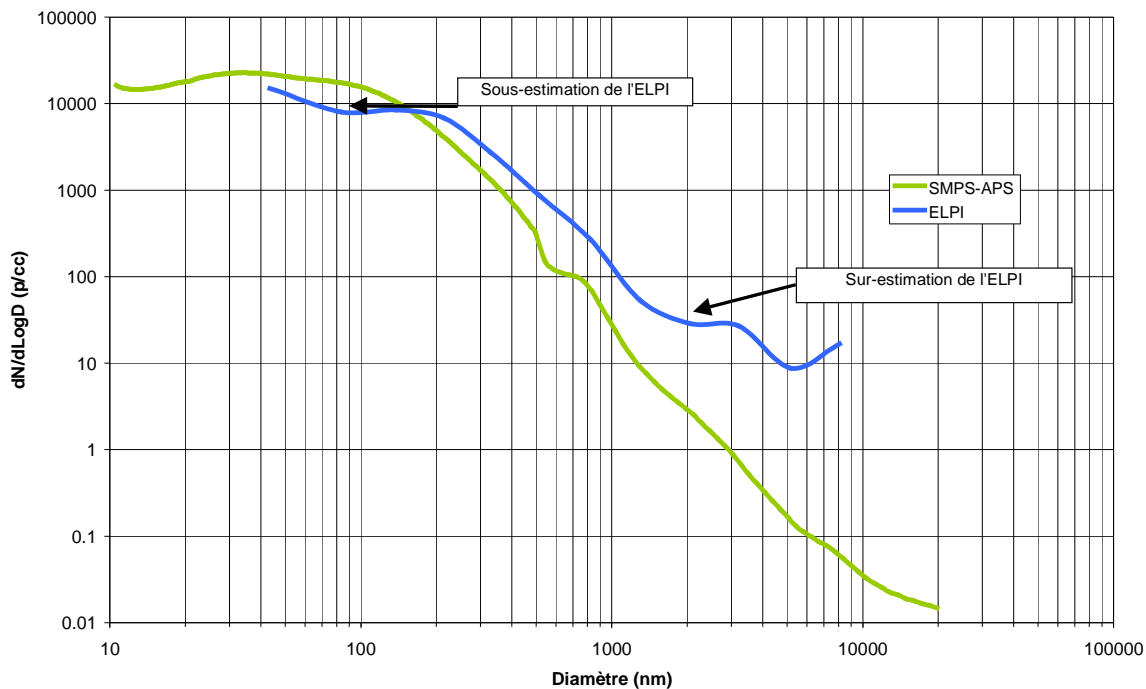


Figure 6.8 : comparaison entre l'ELPI et l'ensemble SMPS-APS ; ordonnée logarithmique.

### 6.1.3 MISE EN ŒUVRE DU COMPTEUR OPTIQUE GRIMM

Un compteur optique de type Grimm 1.105 a été mis en œuvre durant la campagne de Douai. Cet appareil revendiquant la production d'information en terme massique mais aussi granulométrique, l'objectif initial était de profiter d'un déploiement important de matériel sur ces deux plans, pour mieux le situer.

La procédure de validation des données a mis en évidence un manque de variabilité au vu des autres appareils : nous avons préféré de ce fait invalider les données de cette campagne.

En terme de perspectives, d'une part, cet appareil sera intégré dans l'étude LCSQA consacrée aux indicateurs optiques (interventions ponctuelles et indicatives) ; d'autre part, le constructeur commercialise désormais une version environnementale bénéficiant d'améliorations importantes par rapport à une application de surveillance en continu.

#### 6.1.4 COMPARAISON ELPI-TEOM

Une comparaison vis à vis des  $PM_{10}$  et des  $PM_{2.5}$  mesurées à l'aide de TEOM 50°C a été effectuée.

Les conventions suivantes ont été utilisées:

- $N_{total}$  ( $p.cm^{-3}$ ): Concentration en nombre des particules comptées par l'ensemble des plateaux de l'ELPI (taille entre 40 nm et 8  $\mu m$ ),
- $N_1$  ( $p.cm^{-3}$ ): Concentration en nombre des particules comptées par les plateaux 1 à 3 de l'ELPI (taille entre 40 nm et 140 nm),
- $N_2$  ( $p.cm^{-3}$ ): Concentration en nombre des particules comptées par les plateaux 3 à 6 de l'ELPI (taille entre 140 nm et 515 nm),
- $N_3$  ( $p.cm^{-3}$ ): Concentration en nombre des particules comptées par les plateaux 6 à 12 de l'ELPI (taille entre 515 nm et 8  $\mu m$ ),

Les figures 6.9 et 6.10 montrent le suivi temporel au cours de la campagne sur le site de Douai

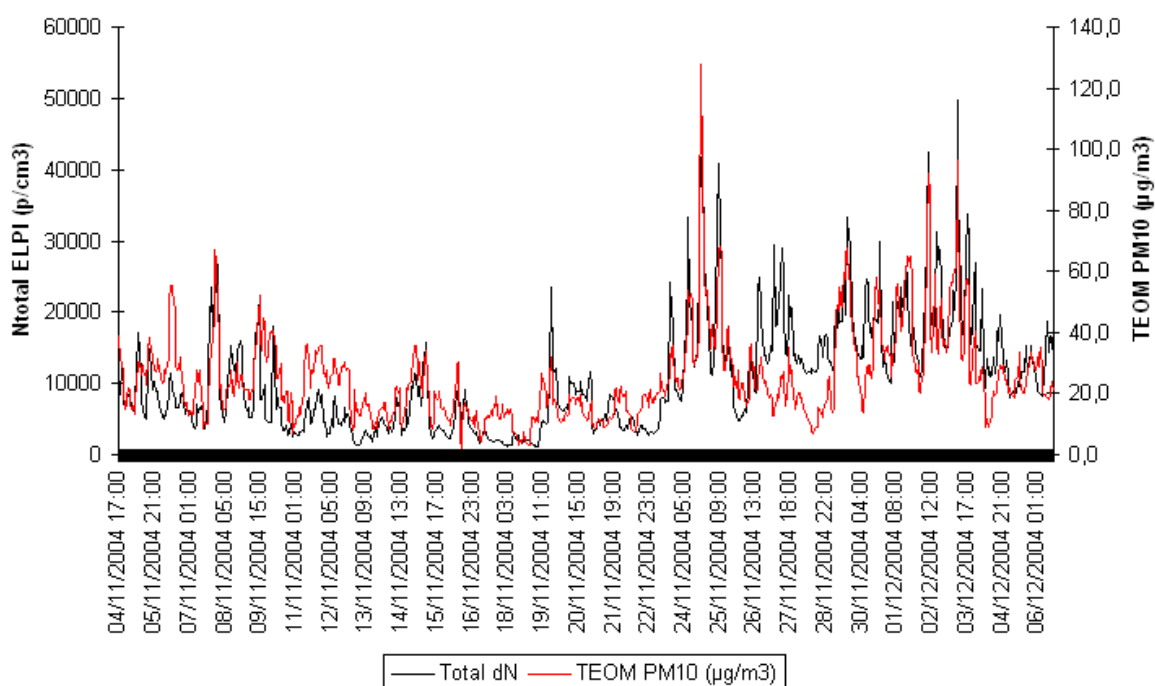


Figure 6.9 : suivi temporel conjoint  $dN_{total}$  (10nm – 8 $\mu m$ ) et [TEOM- $PM_{10}$ ]

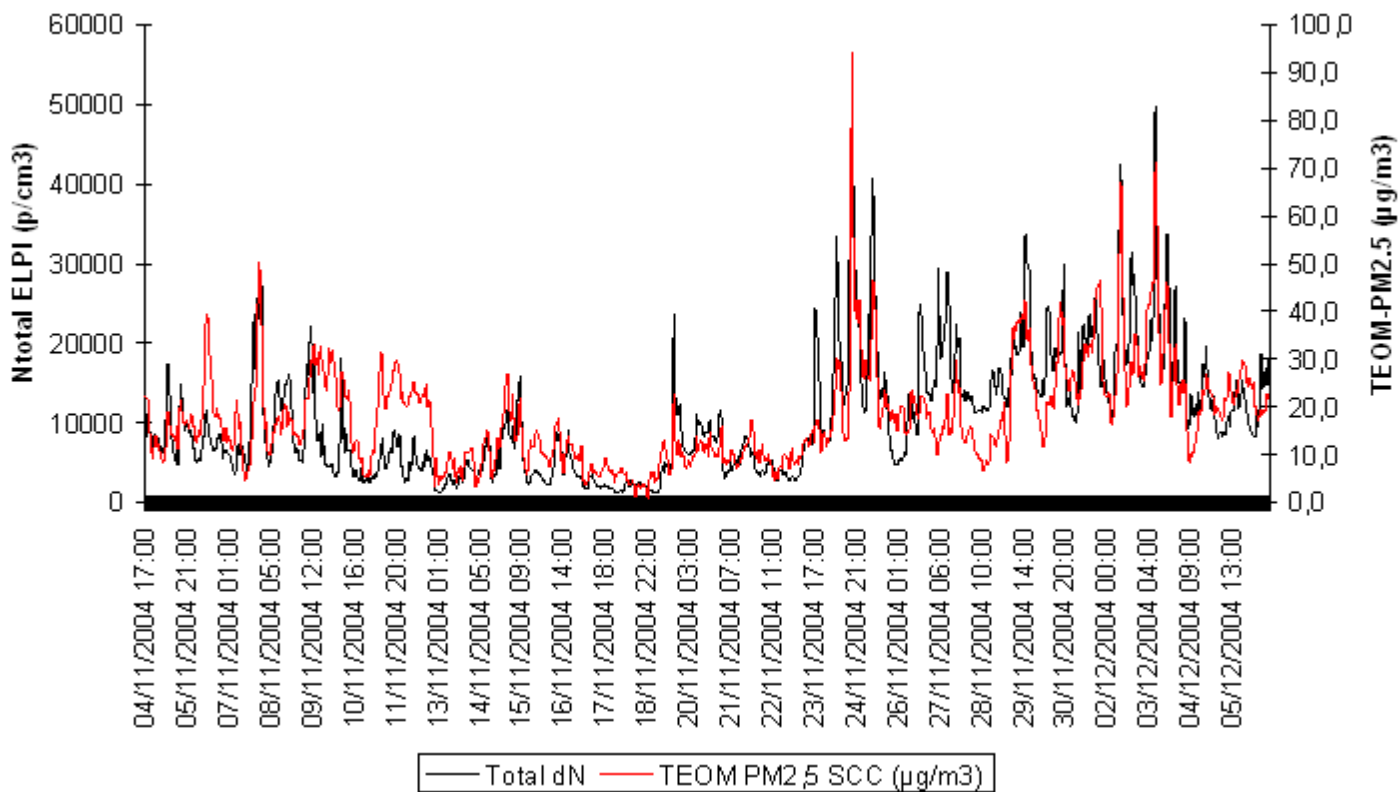


Figure 6.10 : suivi temporel conjoint  $dN_{total}$  (10nm – 8µm) et [TEOM-PM<sub>2.5</sub>]

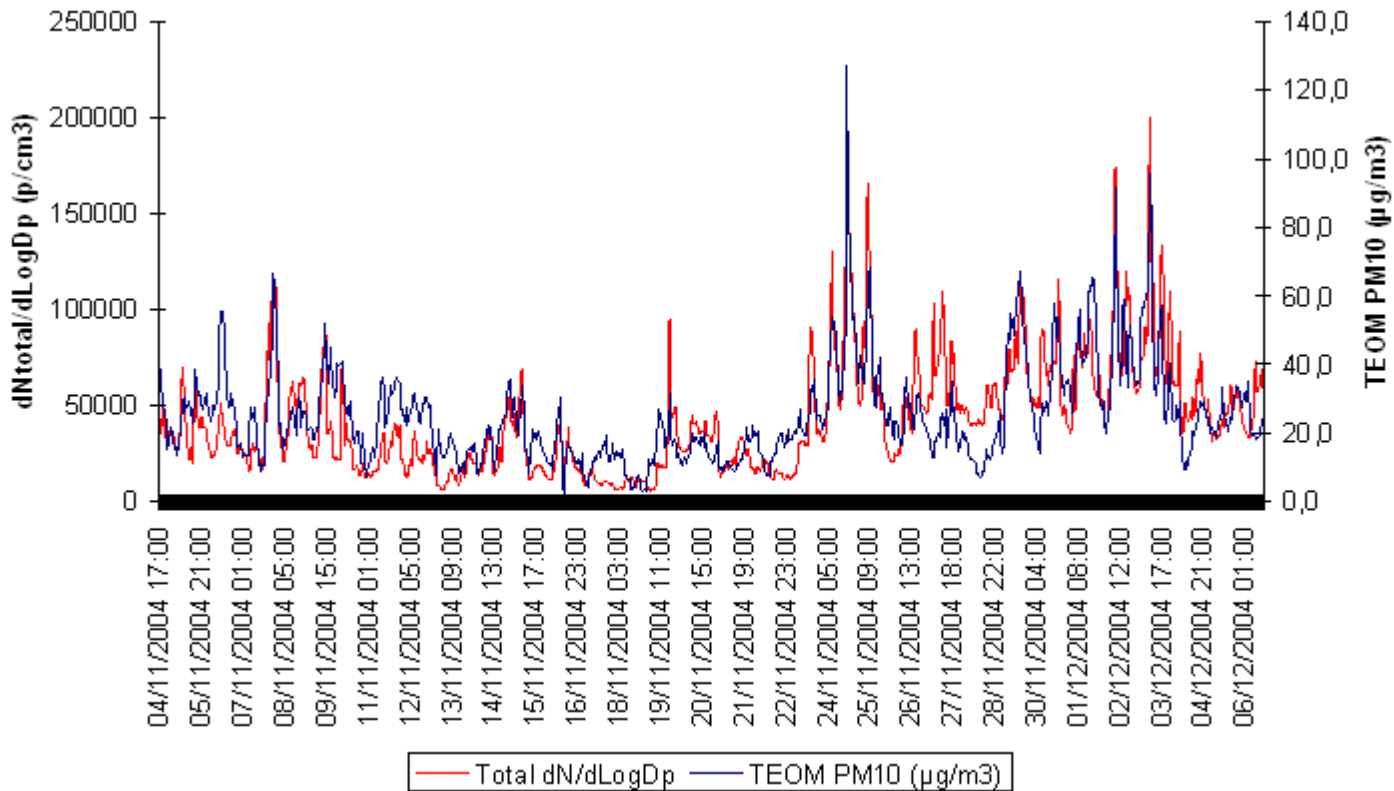


Figure 6.11 : suivi temporel conjoint  $dN_{total}/dLogD_p$  (10nm – 8µm) et [TEOM-PM<sub>10</sub>]

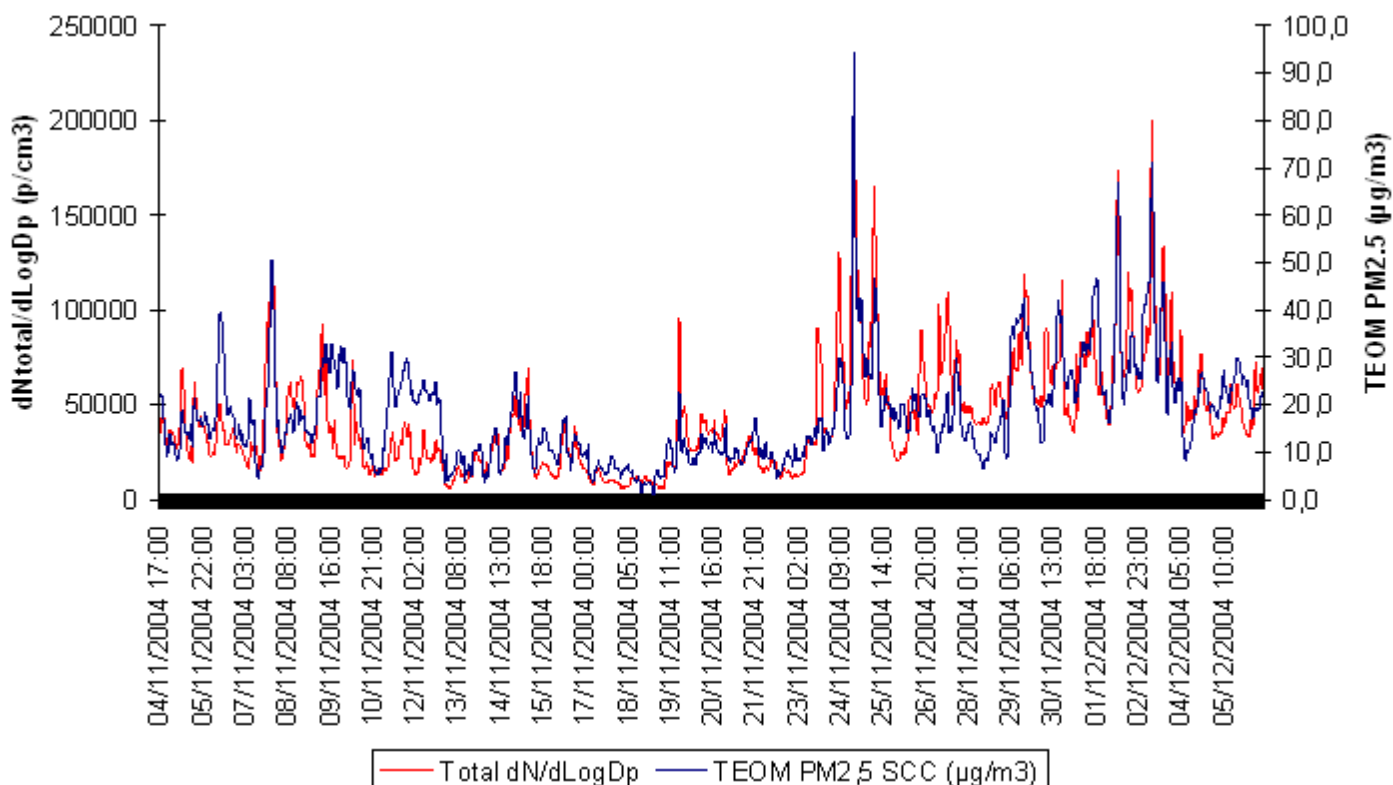


Figure 6.12 : suivi temporel conjoint  $dN_{total}/dLogD_p$  (10nm – 8µm) et [TEOM-PM<sub>2.5</sub>]

Le tableau 6.3 présente les différents coefficients de corrélation " R" calculés entre les différents paramètres mesurés (sur une base horaire).

	TEOM PM <sub>10</sub>	TEOM PM <sub>2.5</sub>
<b>dN<sub>total</sub></b>	0,753	0,757
<b>dN<sub>1</sub></b>	0,713	0,714
<b>dN<sub>2</sub></b>	<b>0,807</b>	0,816
<b>dN<sub>3</sub></b>	0,764	<b>0,880</b>

Tableau 6.3 : corrélation entre les TEOM et les différents paramètres issus de l'ELPI.

Le suivi temporel montre un certain phasage entre les mesures en nombre et en masse (dans le sens où l'on observe une synchronisation générale en terme de hausses et de baisses). Cependant, on constate une certaine indépendance, à l'image de certains pics en concentration en nombre non mis en évidence par la méthode massique

Les coefficients de corrélation obtenus entre la méthode par comptage et la méthode massique sont relativement significatifs (aucune valeur n'est inférieure à 0,71, les valeurs les plus élevées sont obtenues avec la méthode massique sur les particules ≤ 2,5 µm).

## **Conclusion :**

La comparaison entre TEOM (PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>) et l'ELPI montre une correspondance intéressante sur le site de Douai fortement influencé par la circulation automobile urbaine.

## **6.2 CAMPAGNE DE MESURE ESTIVALE SUR LE SITE DE REFERENCE**

Une campagne de mesure a été réalisée sur le site AIRPARIF de Gennevilliers, de mi-juillet à mi-août 2005.

L'objectif de cette campagne a été d'examiner l'impact de la saison sur la distribution en taille, sachant que le concept de saison est bien sûr lié ici aux aspects de température, d'ensoleillement, d'arrêt du chauffage (mais de climatisation), et aussi avant tout de migration estivale vers les lieux de vacances.

### **Concentration en nombre (Tableau 6.3)**

Nous relevons des niveaux de concentration totale nettement supérieurs aux valeurs hivernales (20 000 p/cc contre 9 000, 13 500 et 15 000 en hiver 2004, 2005 et 2003).

Cette augmentation notable se retrouve également au niveau de la fraction allant de 0,5 à 20 µm.

Cette augmentation semble spécifique à la concentration en nombre puisque les valeurs massiques PM<sub>10</sub> sont comparables, voire même inférieures pour le PM<sub>2,5</sub>.

Le profil journalier moyen (Figure 6.10) présente une différence notable par rapport à nos observations hivernales : en effet, les remontées du matin et de la fin de journée donnent l'impression d'être lissées.

La période concernée suppose une réduction importante des émissions par rapport à la période hivernale, à la fois en terme de chauffage urbain (saison chaude), et en terme de trafic (période de congés).

Pourtant, nous observons une augmentation des concentrations. Une hypothèse naturelle est celle de la photochimie (associée éventuellement à des vents moindres et donc à un renouvellement moindre de l'atmosphère). Celle-ci ayant par ailleurs lieu de manière privilégiée en milieu de journée, ceci pourrait expliquer une diminution moindre des concentrations en milieu de journée.

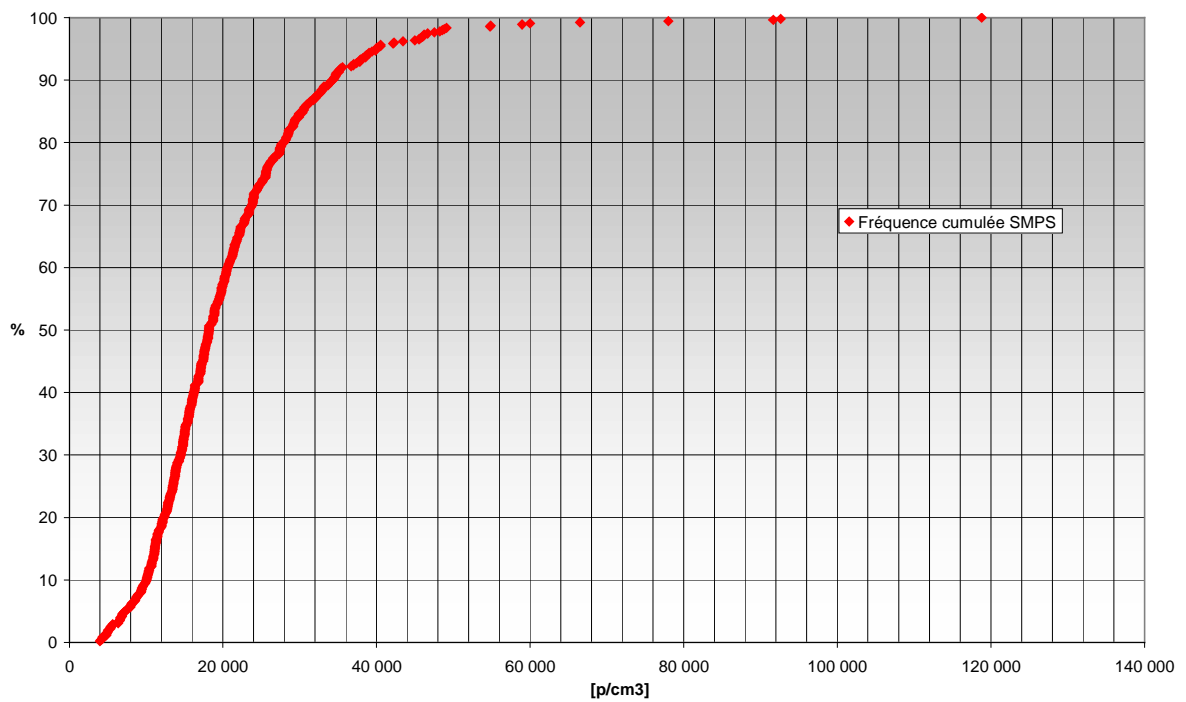


Figure 6. 13 : campagne estivale de Gennevilliers – SMPS – fréquence cumulée.

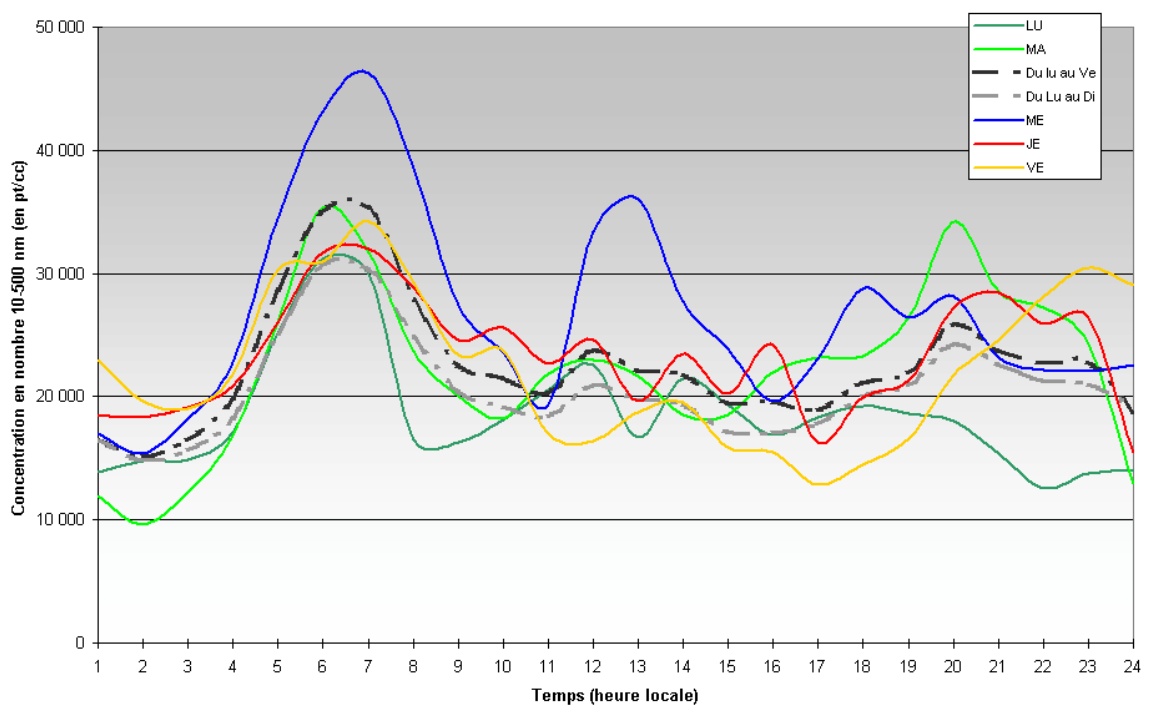


Figure 6. 14 : campagne estivale de Gennevilliers – SMPS – fréquence cumulée.

Moyennes horaires						
Polluants particuliers et gazeux	Percentiles		Valeurs extrêmes et médiane			Moyennes
	5%	95%	Minimum	Médiane	Maximum	
<b>GENNEVILLIERS ESTIVAL</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	7 200	40 000	4 000	18 100	92 600	20 700
N3 = C [500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	12	285	6	28	458	43
PM10 (en µg/m <sup>3</sup> )	7	42	1.6	18	96	20
PM2,5 (en µg/m <sup>3</sup> )	3	20	0.7	8	48	10
O <sub>3</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			1.0	49	134	48
NO (en µg/m <sup>3</sup> )			0	2	204	6
NO <sub>2</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			5	20	102	25
<b>GENNEVILLIERS</b>						
<b>2005</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	3 900	33 700	1 600	10 300	75 000	13 500
N3 = C [500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	2	81	1	9	200	20
PM10 (µg/cm <sup>3</sup> )	6	54	0.9	17	139	22
PM2,5 (µg/cm <sup>3</sup> )	4	35	0.5	12	60	15
O <sub>3</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			0	44	123	42
NO (en µg/m <sup>3</sup> )			0	20	461	20
NO <sub>2</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			5	40	173	40
<b>2004</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	2 000	21 000	800	7 100	50 000	8 900
N3 = C [500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	2	75	1	9	139	22
PM10 (µg/cm <sup>3</sup> )	7	53	0.1	18	133	22
PM2,5 (µg/cm <sup>3</sup> )	3	35	0.2	11	77	14
O <sub>3</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			15	41	82	45
NO (en µg/m <sup>3</sup> )			1.0	9	99	13
NO <sub>2</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			7.0	40	84	38
<b>2003</b>						
C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	5 000	35 000	1 500	13 000	84 000	15 000
PM10 (µg/cm <sup>3</sup> )	10	85	0.7	25	160	31
PM2,5 (µg/cm <sup>3</sup> )	5	45	0.7	15	80	19
O <sub>3</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			5	36	67	35
NO (en µg/m <sup>3</sup> )			1	14	110	24
NO <sub>2</sub> (en µg/m <sup>3</sup> )			23	51	97	55

Tableaux 6.4 : niveaux de concentration observés lors de la campagne estivale de Gennevilliers. Comparaison avec les campagnes hivernales de 2004 et 2005.



R	APS	TEOM PM10	TEOM PM2.5	O3	NO2	NO
<b>GENNEVILLIERS 2005 ESTIVAL</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	0.45	0.64	0.67	-0.45	0.84	0.68
N3 = C [ 500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )		0.39	0.63	-0.22	0.46	0.26
<b>GENNEVILLIERS 2005</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	0.32	0.70	0.70	-0.57	0.77	0.72
N3 = C [ 500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )		0.54	0.65	-0.41	0.26	0.20
<b>GENNEVILLIERS 2004</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )	0.55	0.77	0.77	-0.88	0.92	0.89
N3 = C [ 500 - 20000 nm] (p/cm <sup>3</sup> )		0.59	0.76	-0.68	0.86	0.14
<b>GENNEVILLIERS 2003</b>						
N1+ N2 = C [10 - 500 nm] (p/cm <sup>3</sup> )		0.51	0.58	-0.50	0.64	0.73

Tableau 6.5 : corrélation entre différents paramètres.

## Distribution en taille

Les figures 6.10 et 6.11 fournissent la distribution en taille moyenne obtenue de cette campagne estivale.

Nous relevons un spectre proche dans sa forme générale, de ce que nous observons en hiver sur le site de Gennevilliers (domination de la gamme ultrafine), à ceci près que :

- les concentrations sont beaucoup plus importantes (observation en cohérence avec la comparaison sur le plan de la concentration totale),
- une remontée significative est même observée dans les étages les plus bas (diamètre < 20 nm).

Ce développement du mode le plus fin va dans le sens de sources fraîches, qu'il s'agisse de combustion, ou plus logiquement, de nucléation associée à une photochimie importante.

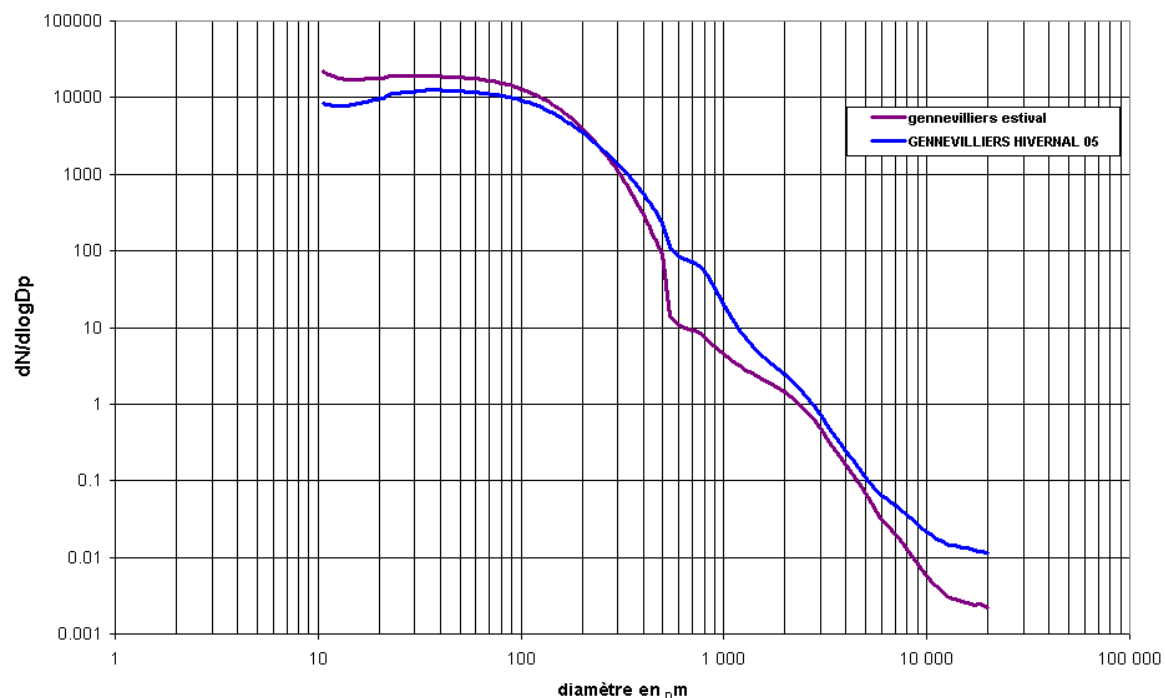


Figure 6.15 : distribution en taille moyenne mesurée lors de la campagne estivale de Gennevilliers. Comparaison avec Gennevilliers hivernal 2005. Echelle logarithmique.

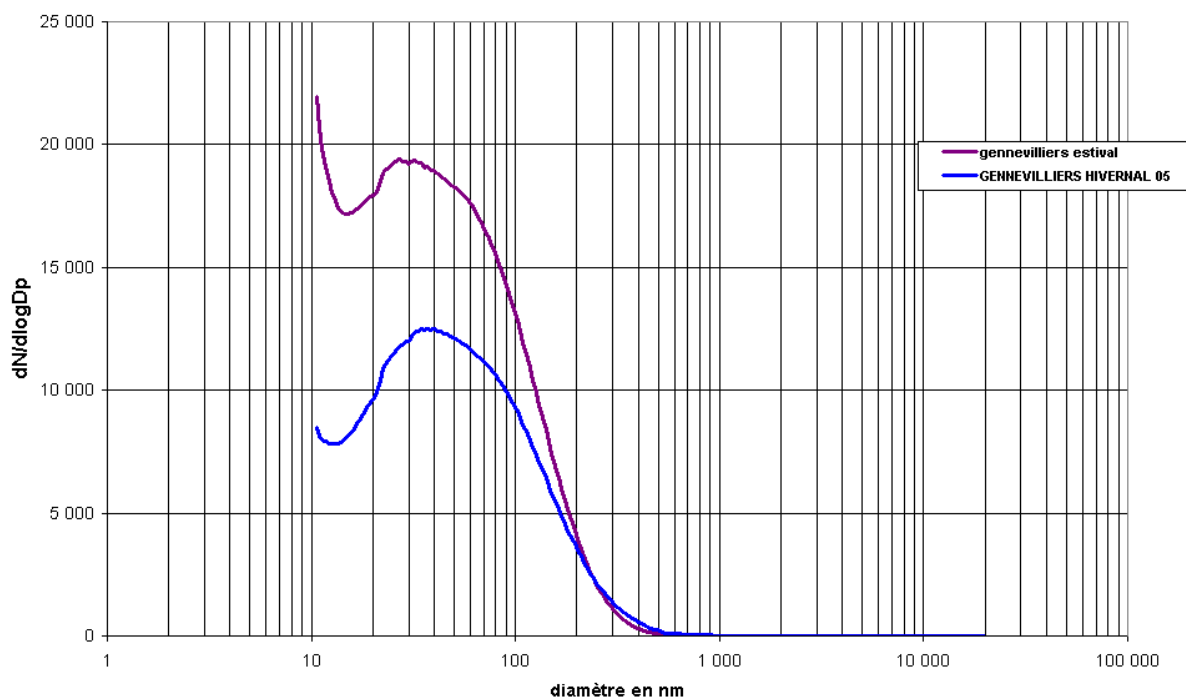


Figure 6.16 : figure identique à la figure 6.10, mais sans échelle logarithmique.

### Campagne estivale sur le site de référence (Gennevilliers) : conclusion

L'observation des résultats obtenus pour cette campagne estivale fait apparaître des différences notables, tout à fait intéressantes, vis-à-vis des campagnes hivernales menées sur le même site.

En effet, si cette comparaison montre que la concentration massique est stable pour le PM<sub>10</sub>, voire même inférieure pour le PM<sub>2,5</sub>, nous observons une augmentation des concentrations en nombre dans le cas de la période estivale.

Ceci se traduit par l'apparition d'un mode nanométrique (observation partielle en terme de diamètre), et un certain lissage du profil journalier : ces deux éléments suggèrent l'intervention de phénomènes photochimiques, pouvant expliquer à la fois cette création de nouvelles particules dans le mode nanométrique, et ces niveaux élevés en concentration en pleine journée contrastant avec la bi-modalité observée en hiver.

Bien évidemment, il serait également important de prendre en compte le rôle de la météorologie, notamment en terme de renouvellement des masses d'air.

## **7. CONCLUSION**

Face aux interrogations suscitées par les particules submicroniques, et plus particulièrement ultrafines, en terme d'effets sur la santé, le LCSQA a engagé dès 2003 une étude spécifique.

Ce travail a rassemblé jusqu'ici les participants au groupe de suivi « particules », AIRPARIF qui contribue largement à cette action (site de référence), et les trois membres du LCSQA.

L'exercice 2005 a été particulièrement riche, puisque :

- D'une part l'action « suivi dans le temps » atteint un premier niveau de maturité avec le recul et le volume que génèrent trois campagnes.
- D'autre part, nous enregistrons les premiers retours de l'action « typologie », avec deux campagnes, l'une sur un site à influence automobile, l'autre sur le site de référence en période estivale.

En terme de résultats,

- Les observations de la campagne de mesure hivernale 2005 confirment les résultats des années précédentes, en apportant désormais un certain poids statistique. Nous disposons ainsi d'une bonne connaissance de la gamme de variabilité des différents paramètres.
- Nous relevons un niveau de concentration plus important au niveau du site à influence trafic, ainsi que sur le site de référence en période estivale, suggérant dans ce dernier cas l'intervention de processus photochimiques (restant à préciser).

Par ailleurs, nous poursuivons un travail de test et de développement d'outils :

- nous avons ainsi considéré en collaboration avec l'EMD, le potentiel de l'impacteur ELPI ;
- nous avons également développé au sein de l'INERIS un logiciel de reconstruction des spectres granulométriques, permettant de rechercher d'éventuels sous-groupes de particules et offrant un mode de visualisation simplifié.

## **8. REFERENCES**

**[Le Bihan 2004]** - « Surveillance des particules submicroniques », O. Le Bihan, rapport LCSQA, 2004.

**[Geofroy 2004]** – Thèse de doctorat.

# THEME : MESURES DES POLLUANTS REGLEMENTES - PARTICULES

## *SURVEILLANCE DES PARTICULES SUBMICRONIQUES*

### CONTEXTE ET OBJECTIFS

La communauté scientifique porte aujourd'hui un effort tout à fait notable sur les particules submicroniques, et tout particulièrement les particules ultrafines (diamètre < 0,1  $\mu$ m) voire nanométriques.

Ce développement fait suite à la mise en évidence, par les toxicologues, de l'impact sanitaire particulièrement important de cette fraction.

Ceci est largement admis par les instances comme l'OMS, et est repris dans le « position paper CAFE », par la Convention sur la pollution transfrontalière, le réseau européen EMEP, et le PNSE.

Il est demandé, notamment aux différents pays membres de la communauté européenne, de développer des travaux permettant de connaître l'exposition des populations aux particules fines et ultrafines.

De ce fait, on assiste, en parallèle à la poursuite des recherches en toxicologie, au développement d'actions de caractérisation. Des techniques de comptage et de mesure de la distribution en taille sont mises en œuvre sur le terrain, afin que l'on connaisse les caractéristiques de l'aérosol, notamment urbain.

Certains pays comme l'Allemagne et la Grande-Bretagne ont instrumenté des sites à vocation pérenne pour une mesure en continu. C'est également le cas de villes comme Copenhague, ou Zurich, cette dernière ayant fait le choix du comptage en continu au niveau de plusieurs sites de surveillance.

L'étude proposée ici s'inscrit dans ce cadre. Elle a pour objectif de documenter la situation française, à travers la mise en œuvre de techniques de **comptage** et de caractérisation de la **distribution en taille**. Cette caractérisation se fait à la fois dans l'espace, et dans le temps :

- **Temps** : par des campagnes de mesure sur un site de référence, reconduites annuellement, afin de permettre le suivi sur plusieurs années de l'impact de l'évolution des sources ;
- **Espace** : par la détermination des caractéristiques de l'aérosol submicronique dans différentes conditions « Air ambiant » françaises (typologie).

### TRAVAUX EN COURS

- Métrologie et Typologie :

Une campagne de mesure est en cours de réalisation sur le site automobile en milieu ouvert de la station de mesure de l'Ecole des Mines de Douai. Son exploitation est prévue dans l'exercice 2005.

- Suivi dans le temps :

En collaboration avec AIRPARIF, et dans la suite du programme 2003, l'INERIS a assuré la mesure de l'aérosol dans la gamme 10 nm – 500 nm durant 5 semaines (février-mars) sur le site de fond urbain de Gennevilliers. Un suivi de la gamme 0,5-20  $\mu$ m a également été assuré (prêt d'un appareil APS par le LNE).

Un travail commun, préliminaire, a été réalisé en afin de mettre à plat le choix du site. Ont été considérés des paramètres tels que la connaissance du site, sa stabilité, sa représentativité, sa pérennité, ses équipements (notamment PM10 et PM2,5), ses capacités d'accueil et d'accessibilité. Ceci a mené à la confirmation du site de Gennevilliers comme site de référence, pour la suite des travaux.

Les résultats préliminaires sont les suivants :

- la concentration en nombre mesurée a varié dans une gamme légèrement inférieure à celle de la campagne 2003 ; ceci est en cohérence avec les indicateurs PM
- un travail de représentation graphique est en cours afin de permettre l'observation temporelle de la granulométrie dans son entier, et de permettre des comparaisons
- les profils hebdomadaires de la concentration en nombre 2003 et 2004, ont été étudiés : ils montrent une très bonne similarité, avec un pic matinal, et un pic en fin de journée ; une première comparaison avec des sites trafic a été effectuée, et montre de bonnes similarités particulièrement en ce qui concerne le pic du matin, sachant que d'autres paramètres, notamment météorologiques, interviennent par ailleurs
- une synthèse bibliographique a été réalisée sur le précédent principal, à savoir le site de Erfurt, en ex-RDA
- un premier échange a été assuré avec des épidémiologistes ; il a mis en évidence la question la « représentation » de l'aérosol, c'est à dire de l'identification des paramètres descriptifs les plus pertinents quant à la caractérisation et au suivi de l'aérosol.

## **TRAVAUX PROPOSES POUR 2005**

Nous proposons un programme comprenant 2 volets, complétés par un volet « métrologie », et un volet « veille-prospective » :

### **Métrologie : granulométrie supermicronique**

La campagne de mesure de Douai -en cours- comprend une comparaison entre méthodes de suivi massique PM 10, PM 2.5, et granulométrie (APS, ELPI<sup>\*</sup>, Grimm<sup>\*</sup>).

Ces résultats feront l'objet d'une analyse, en collaboration avec l'EMD.

---

<sup>\*</sup> Campagne de Douai

## **Suivi dans le temps**

Le principe retenu est de reconduire annuellement une campagne hivernale de 5 semaines sur le site pris en référence, en collaboration avec AIRPARIF.

## **Typologie**

L'objectif de ce volet est de considérer différentes catégories de sites, de les caractériser, et de les positionner les uns par rapport aux autres, ainsi que par rapport au site de référence.

Le programme 2005 comprendra deux actions :

- en collaboration avec l'EMD, l'exploitation des données recueillies à l'automne 2004 sur leur site automobile en milieu ouvert ;
- conformément à la décision prise lors de la réunion « particules » du 24 novembre 2004, la réalisation et le dépouillement d'une campagne d'été sur le site de référence (aspect saisonnier). L'exploitation des données de cette seconde campagne sera réalisée en 2005.

## **Veille-prospective**

Nous poursuivrons en 2005 un train d'analyse bibliographique des expériences menées chez nos homologues, notamment européens. Le débat sur le mode futur de surveillance des particules, sera également suivi.

Enfin, le travail de réflexion sur le concept de « site multi-instrumenté », amorcé au cours de l'exercice 2004, et intégré dans l'étude « missions diverses du LCSQA » sera poursuivi en lien étroit avec ce programme.

## **COLLABORATIONS**

LNE, EMD, AIRPARIF.

## **DUREE DES TRAVAUX**

La logique de ce programme est de s'inscrire dans une certaine pérennité, afin d'évaluer l'évolution dans le temps de la situation surveillée. Il s'agit donc d'un programme pluriannuel.