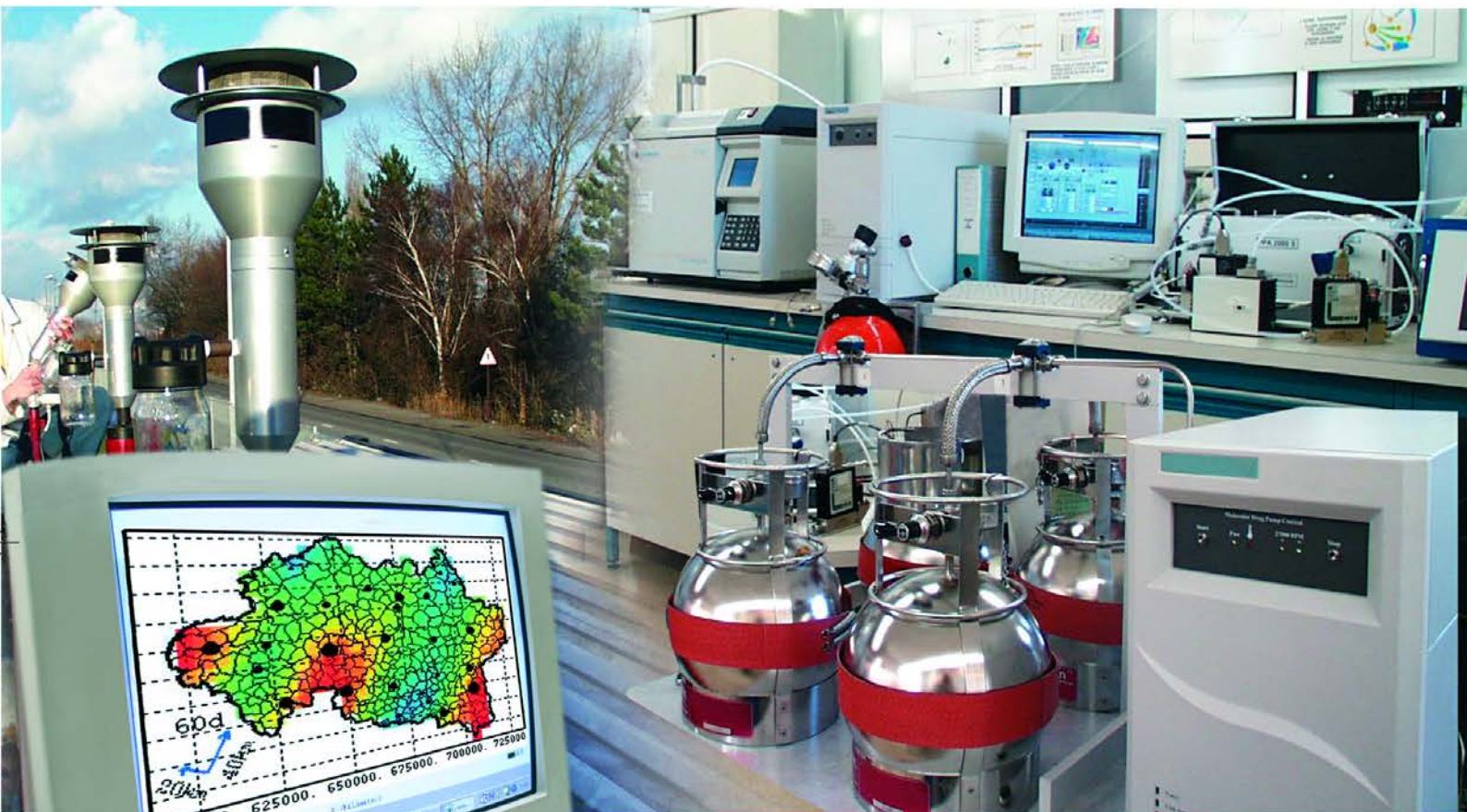




Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Métrologie des polluants non réglementés

**Particules submicroniques: bilan des travaux 2012-13 sur le
granulomètre de type UFP3031**

Rapport LCSQA (Programmes 2012 et 2013)

A. USTACHE





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, et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique ont été financés par la Direction Générale de l'Energie et du Climat (bureau de l'air) du Ministère de l'Ecologie, du Développement Durable, et de l'Energie (MEDDE). Ils 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 au MEDDE et 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.



Bilan des travaux 2012-2013 sur le granulomètre de type UFP3031

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Métrologie des polluants non-règlementés

Programme financé par la
Direction Générale de l'Énergie et du Climat (DGEC)

2012-2013

A. USTACHE, O. LE BIHAN, O. FAVEZ

Ce document comporte 22 pages (hors couverture et annexes)

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	A. USTACHE	E. LEOZ	N.ALSAC
Qualité	Ingénieur Direction des Risques Chroniques	Responsable Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Responsable du pôle CARA Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

RESUME	7
1. INTRODUCTION	8
2. LE GRANULOMETRE UFP 3031	9
3. INTER-COMPARAISONS EN LABORATOIRE	11
3.1 Protocole d'inter-comparaisons en laboratoire	11
3.2 Résultats	12
3.2.1 Comparaison des deux UFP3031 avec le SMPS de référence	12
3.2.2 Comparaison des deux UFP3031 entre eux.....	16
4. INTER-COMPARAISON EN STATION	17
5. CONCLUSION	21
LISTE DES ANNEXES	22

RESUME

En réponse à des sollicitations régionales et en concertation avec le LCSQA, certaines AASQA ont récemment acquis des granulomètres de type UFP3031 (commercialisés par la société TSI) pour la mesure des particules ultrafines. Trois d'entre elles (Air Rhône-Alpes, AirAq et AirPACA) sont actuellement équipées de cet instrument. Ce dernier présente l'intérêt de ne pas utiliser de source radioactive ni de butanol contrairement à la plupart des autres granulomètres disponibles sur le marché et/ou utilisés pour des travaux de recherche.

En 2012 et 2013, les travaux du LCSQA sur les particules ultra-fines ont essentiellement porté sur la préparation et la réalisation d'exercices d'intercomparaison de ces granulomètres. Ainsi, trois intercomparaisons en laboratoire ont été organisées à l'institut TROPOS (Leipzig, Allemagne). Cet institut dispose en effet d'un granulomètre considéré comme méthode de référence par la communauté scientifique européenne. Une intercomparaison a également été organisée dans une station d'Atmo Picardie afin d'évaluer le comportement des analyseurs et de leur ligne de prélèvement en conditions réelles d'utilisation.

L'objectif des campagnes réalisées à Leipzig étaient de vérifier le respect des critères de bon fonctionnement définis avec le constructeur. Seuls les deux instruments d'Air Rhône-Alpes ont pu prendre part à l'ensemble de ces campagnes. Des écarts significatifs vis-à-vis de ces critères ont été observés lors des trois campagnes. En particulier, malgré des résultats relativement satisfaisants lors de la première campagne (janvier 2012), les comparaisons par rapport à la méthode de référence d'octobre 2012 indiquent une nette surestimation (e.g. de 10 à 40%) pour les classes de taille les plus fines (20-30nm, 30-50nm et 50-70nm) et une sous-estimation (jusqu'à 20%) pour les classes de taille les plus grosses (>100 nm). Cependant, une tendance à l'amélioration a pu être constatée lors de la troisième intercomparaison (mars 2013), suggérant l'absence de dérive systématique sur les instruments et la période étudiée.

Concernant les tests de reproductibilité, malgré des résultats globalement encourageants pour les différents couples d'analyseurs d'Air Rhône-Alpes et d'AirAq, l'inhomogénéité des protocoles de calibration (e.g. à l'aide du SMPS TROPOS pour les instruments d'Air Rhône-Alpes et du SMPS TSI pour ceux d'AirAq et Air PACA) pourrait engendrer une différence de comportement d'un site de mesure à l'autre en fonction des situations.

L'ensemble des résultats obtenus montrent que les appareils de type UFP3031 testés en 2012 et 2013 semblent pouvoir fournir des informations utiles et suffisamment fiables pour une surveillance indicative en air ambiant sous réserve d'une optimisation de leurs protocoles de maintenance et de contrôle qualité et de l'homogénéisation de leur procédure de calibration. Les travaux 2014 porteront notamment sur ces points d'améliorations.

1. INTRODUCTION

La communauté européenne de la surveillance de la qualité de l'air s'est engagée depuis quelques années vers des actions prospectives dédiées aux particules submicroniques. Un groupe de travail (GT 32) a notamment été créé au sein du CEN TC 264 afin d'émettre des recommandations sur la mesure de la concentration en nombre et de la granulométrie des aérosols.

Dans ce contexte, le LCSQA/INERIS réalise des tests d'évaluation instrumentale ainsi que des études de cas sur cette thématique depuis 2003. En particulier, il assure depuis cette date un suivi des particules submicroniques sur le site de fond urbain de Gennevilliers en collaboration avec AIRPARIF lors de campagnes de mesure reconduites annuellement, jusqu'à 2011. Des campagnes estivales ont également été réalisées sur ce site en 2005, 2009 et 2010 afin d'étudier la variabilité saisonnière des concentrations et sources de particules ultrafines.

Les travaux de 2012 et 2013 ont essentiellement porté sur la préparation et la réalisation d'exercices d'intercomparaison de granulomètres de type UFP 3031 (commercialisés par la société TSI). En effet, en réponse à des sollicitations régionales et en concertation avec le LCSQA, certaines AASQA ont récemment acquis des granulomètres de ce type pour la mesure des particules ultrafines sur les conseils du LCSQA. Trois d'entre elles (Air Rhône-Alpes, AirAq et AirPACA) sont actuellement équipées de modèles 3031. Cet instrument présente l'intérêt de ne pas utiliser de source radioactive ni de butanol contrairement à la plupart des granulomètres de type SMPS disponibles sur le marché.

Afin de garantir la qualité des données fournies par cet instrument, pour lequel les retours d'expérience restent très limités, une étroite collaboration a été engagée entre le LCSQA/INERIS et les AASQA concernées. Une groupe d'utilisateurs a été créé en 2011, notamment afin de faciliter les échanges d'information et de centraliser les demandes à réaliser auprès du constructeur. Les compte-rendus des réunions 2012 et 2013 de ce groupe d'utilisateurs sont reproduits en Annexe du présent rapport. Par ailleurs, un protocole d'inter-comparaison, conçu par le LCSQA, Air Rhône-Alpes et AirAq a été proposé à la société TSI, qui l'a approuvé. Ce protocole comprend trois campagnes d'inter-comparaisons en laboratoire, afin d'étudier une éventuelle dérive dans le temps. Ces campagnes ont été effectuées à l'institut TROPOS (Institut für Troposphärenforschung) de Leipzig en janvier et octobre 2012 et en mars 2013. Cet institut est en effet considéré comme la référence européenne en matière de surveillance des particules ultrafines en air ambiant (notamment dans le cadre des programmes EMEP¹ et ACTRIS², ainsi que du réseau GUAN³). Seuls les deux UFP3031 d'Air Rhône-Alpes étaient concernés par l'ensemble de ces campagnes, les analyseurs d'AirAq n'ayant pu prendre part qu'à la dernière campagne.

¹ The European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) : <http://www.emep.int/>

² Aerosols, Clouds, and Trace gases Research InfraStructure Network (ACTRIS) : <http://www.actris.net/>

³ German Ultrafine Aerosol Network (GUAN) : wiki.tropos.de/index.php/GUAN

Enfin le LCSQA a également proposé et organisé une campagne d'inter-comparaison sur une station du dispositif national de surveillance. Cette campagne a eu lieu sur la station Creil Faïencerie d'Atmo Picardie en juin-juillet 2012, réunissant les instruments d'Air Rhône-Alpes et d'AirAq.

Le présent rapport vise à synthétiser les résultats obtenus en 2012-2013 lors de ces différents exercices d'inter-comparaisons (en laboratoire et en station).

2. LE GRANULOMETRE UFP 3031

Le granulomètre UFP 3031 (Figure 1) est commercialisé par la société TSI. Cet instrument est dédié à la mesure des particules ultrafines dans l'air ambiant.



Figure 1 : Le granulomètre TSI UFP3031

Ce système possède notamment les spécifications techniques suivantes :

- Gamme de mesure allant de 20 nm à 800 nm
- 6 canaux (20-30 nm ; 30-50 nm ; 50-70 nm ; 70-100 nm ; 100-200 nm ; >200 nm)
- Débit de prélèvement de 5 L/min.

Il présente l'avantage d'effectuer une classification des particules au moyen d'une colonne DMA (*Differential Mobility Analyser*) sans utiliser de source radioactive, la polarisation des particules étant faite par un chargeur à effet couronne. De plus, le comptage des particules est effectué par un électromètre. Ce système permet de ne pas utiliser de compteur à noyaux de condensation et évite ainsi la manipulation de butanol, principal fluide généralement utilisé dans les instruments de comptage de particules fines.

Le principe de fonctionnement de l'UFP 3031 est schématisé par la Figure 2.

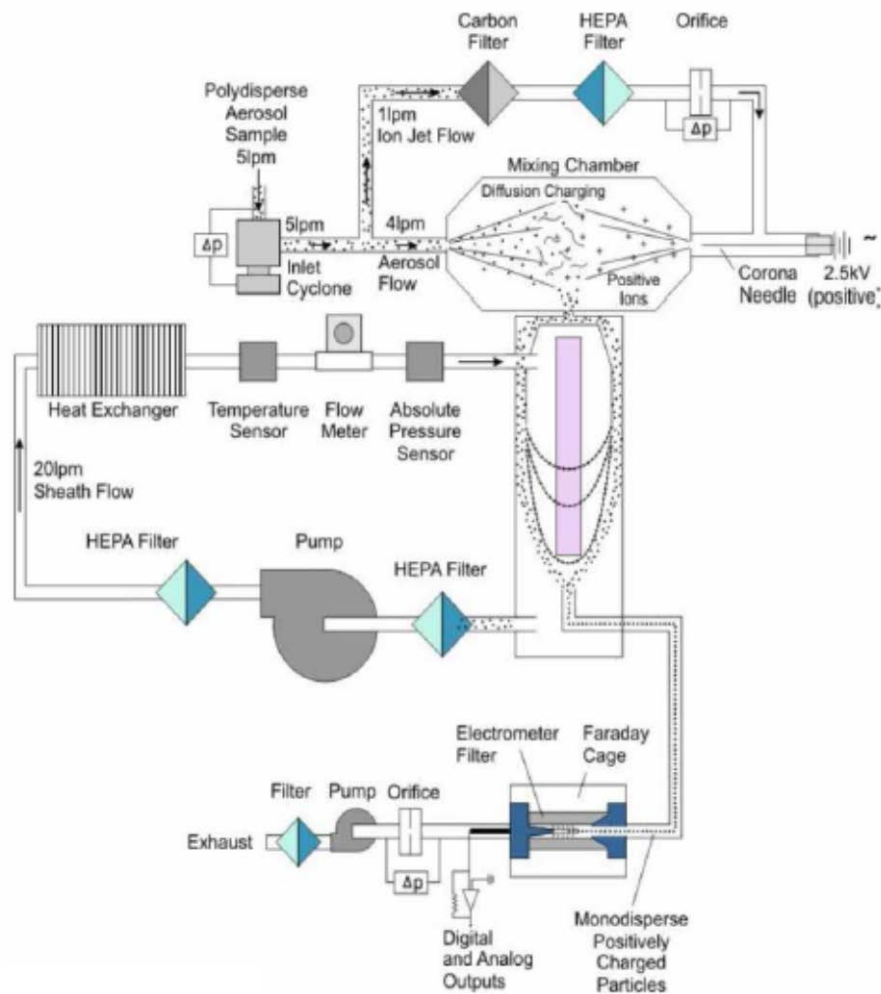


Figure 2 : Schéma de principe du fonctionnement de l'UFP3031

Compte-tenu de cette facilité de mise œuvre sur le terrain, l'UFP 3031 possède des atouts indéniables par rapport au système de type SMPS (*Scanning Mobility Particle Sizer*) dans le cadre d'une utilisation au sein du dispositif national de surveillance. Ces avantages ainsi qu'un premier retour d'expérience relativement satisfaisant⁴ ont conduit le LCSQA et les AASQA citées ci-dessus à lancer une expérimentation « grandeur nature » sur quelques sites permettant notamment d'étudier la fiabilité dans le temps de l'UFP 3031. En effet, il peut être un bon indicateur des variations saisonnières et pluriannuelles du nombre de particules submicroniques. Son utilisation peut également être envisagée pour des comparaisons intersites dans le cadre d'un éventuel dispositif de mesure national équipé d'un parc instrumenta homogène. Il est cependant à noter que plusieurs cas de pannes ou de mal-fonctionnement ont été observés depuis début 2012 pour les instruments d'Air Rhône-Alpes et mi-2012 pour ceux d'AirAq (cf. ci-dessous et Annexes).

⁴ Rapport LCSQA 2011 (O. Le Bihan, L. Malherbe, A. Ustache) : <http://www.lcsqa.org/rapport/2011/ineris/connaissance-nombre-distribution-granulometrique-particules-submicroniques-sui-0>

3. INTER-COMPARAISONS EN LABORATOIRE

Les trois inter-comparaisons en laboratoire décrites dans le présent rapport correspondent à l'évaluation du respect des critères définis dans le cahier des charges conclu entre TSI France et Air Rhône-Alpes. Elles ont été effectuées à l'institut TROPOS de Leipzig selon le protocole décrit en section 3.1.

3.1 PROTOCOLE D'INTER-COMPARAISONS EN LABORATOIRE

Généralités :

Dans un souci d'harmonisation avec les programmes et réseaux de recherche européens existants (en particulier EMEP, ACTRIS, GUAN) et dans l'attente d'une méthode standardisée du CEN/TC 264, le granulomètre de type SMPS de TROPOS utilisé pour les exercices d'inter-comparaison européens est pris comme instrument de référence.

Les tests sont conduits à l'aide d'échantillons réels, les appareils UFP 3031 ainsi que le SMPS échantillonnent de l'air prélevé en extérieur, sur une base de temps quart-horaire.

En cas de non respect d'un des critères d'évaluation décrits ci-dessous, l'UFP 3031 ne pourra être considéré comme équivalent au SMPS de l'institut TROPOS pris ici comme référence.

Les trois campagnes d'intercomparaison ont eu lieu en janvier 2012, octobre 2012 et mars 2013.

Suivi temporel de la concentration :

Cette première évaluation se base sur le suivi temporel des concentrations horaires (moyenne de données quart-horaires en nombre de particules/cm³) de chaque appareil

➤ Comparaison de chaque appareil UFP 3031 avec le SMPS de référence (TROPOS) :

La courbe de suivi temporel des données horaires de l'UFP 3031 doit suivre la courbe des données horaires du SMPS avec une marge d'erreur de :

- +/- 20% pour la concentration mesurée dans chaque canal (de 1 à 5)
- +/- 15% pour la concentration totale (somme des 6 canaux)

La marge d'erreur est calculée sur chaque donnée horaire de l'appareil de référence (SMPS).

➤ Comparaison entre deux appareils UFP 3031 :

La courbe de suivi temporel des données horaires d'un UFP 3031 doit suivre la courbe des données horaires de l'autre UFP 3031 avec une marge d'erreur de :

- +/- 10% pour la concentration mesurée dans chaque canal (de 1 à 5)
- +/- 10% pour la concentration totale (somme des 6 canaux)

La marge d'erreur est calculée sur chaque donnée horaire d'un des deux appareils UFP 3031.

Critères de succès : Les données horaires ne respectant pas un des critères d'évaluation seront invalidées. Pour être valable, le protocole d'intercomparaison devra obtenir 95 % de données validées pour chaque courbe de comparaison.

Régression orthogonale :

Cette deuxième évaluation se fait sur le même jeu de données que celui utilisé pour le suivi temporel des concentrations horaires. Les concentrations en nombre de particules/cm³ ainsi qu'en échelle logarithmique (dN/dLog Dp) sont évaluées en établissant une régression orthogonale des données : de l'UFP 3031 en fonction du SMPS (TROPOS) ainsi que d'un UFP 3031 en fonction de l'autre UFP 3031, conformément aux méthodes de démonstration d'équivalence préconisées par le CEN/TC 264.

Les droites de régression orthogonale sont tracées pour chaque canal (de 1 à 5) ainsi que pour la concentration totale (somme des 6 canaux), pour les données horaires.

Ce protocole a été mis en œuvre lors de trois campagnes d'intercomparaison.

3.2 RESULTATS

Les analyseurs d'AirAq n'ayant pu prendre part qu'à la dernière campagne, seuls les résultats obtenus pour les deux instruments d'Air Rhône-Alpes sont détaillés ci-dessous.

3.2.1 Comparaison des deux UFP3031 avec le SMPS de référence

Ecart point par point

En se basant sur le protocole décrit au chapitre 3.1, les pourcentages de valeurs ne répondant pas au critère ont été calculés et sont représentés dans les figures 3 et 4 ci-dessous. Ces deux figures restituent les résultats de comparaison avec le granulomètre de référence avec les UFP 2408 et 2409 respectivement. Les séries de données étiquetées 1, 2 et 3 correspondent respectivement à la première, deuxième et troisième intercomparaison. Il est rappelé que les marges d'erreurs retenues sont de 20% entre l'instrument évalué et le granulomètre de référence pour les canaux 1 à 5, et de 15% pour le total des différents canaux. Pour remplir avec succès ce test, le nombre de points présentant des marges d'erreurs supérieures à ces pourcentages ne doit pas excéder 5% de chaque série de données considérées. Il est enfin à noter que le canal 6 mesurant les particules de diamètres compris entre 200 et 800 nm n'est pas évalué. La très faible concentration de particules dans cette gamme de taille induit en effet une incertitude importante. Ce canal est affiché ici uniquement à titre indicatif.

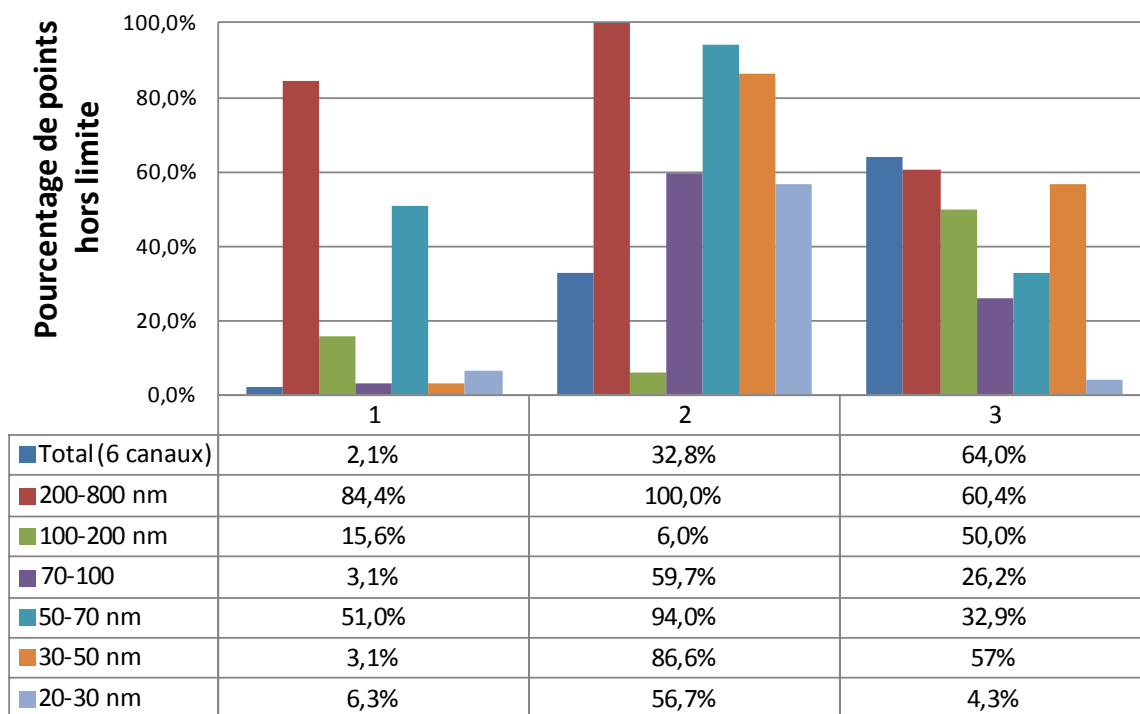


Figure 3 : Comparaison de l'UFP2408 avec le granulomètre TROPOS ;
 Pourcentage de points mesurés hors de la marge d'erreur fixée par le protocole

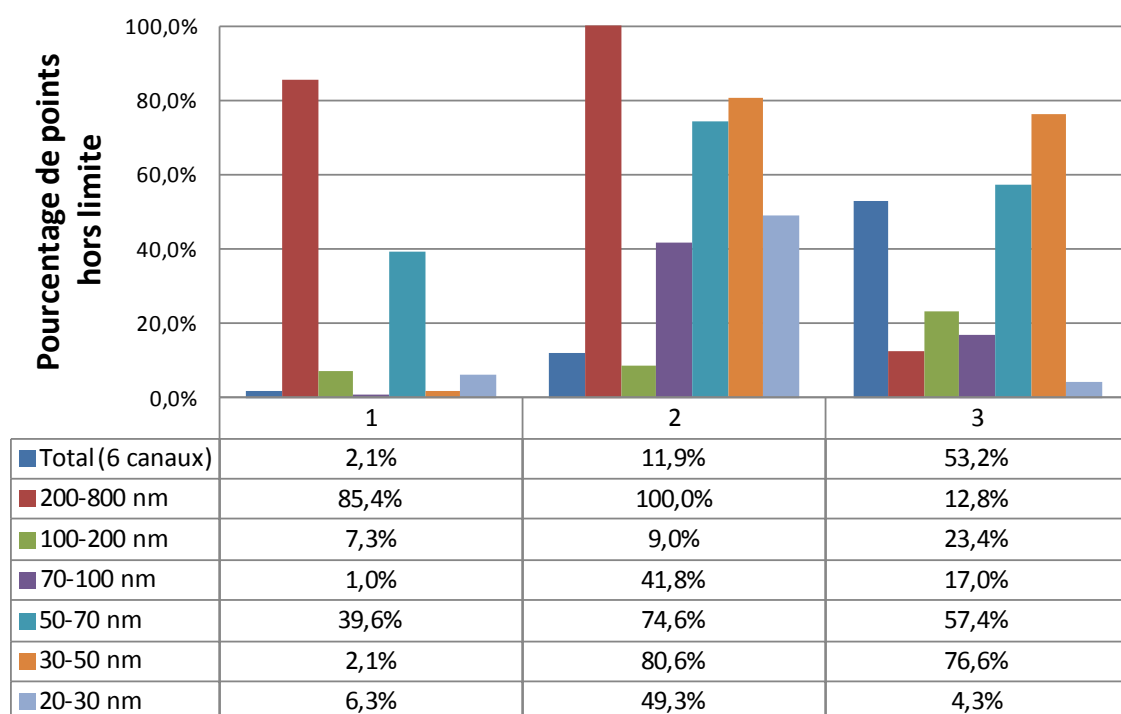


Figure 4 : Comparaison de l'UFP2409 avec le granulomètre TROPOS ;
 Pourcentage de points mesurés hors de la marge d'erreur fixée par le protocole

On constate de nombreux écarts par rapport aux critères de succès fixés par le protocole d'analyse des données.

Lors de la première intercomparaison, le canal mesurant les particules de 50 à 70 nm a enregistré une proportion de points hors limite de 51% pour l'UFP2408 et de 39,6% pour l'UFP2409. Le canal 100-200 nm dépasse également la limite de 5% fixée avec 15,6% et 7,3% de points pour les UFP2408 et 2409 respectivement. On notera également que le premier canal (20-30 nm) franchi la limite avec 6,3% de valeur hors limite pour les deux instruments évalués. Les canaux 30-50 nm, 70-100 nm et le total des six canaux remplissent le critère avec succès.

Lors de la deuxième intercomparaison, une dégradation nette des résultats est observée pour les deux instruments. Aucun canal ne répond au critère. Le plus faible écart est constaté sur le canal 100-200 nm avec 6% et 9% respectivement pour les instruments 2408 et 2409, alors que le pourcentage de points présentant un écart supérieur à 20% avec la méthode de référence est de l'ordre de 80% pour les canaux des écarts 30-50nm et 50-70nm.

Une légère amélioration est constatée pour la troisième intercomparaison. Néanmoins, seul le premier canal enregistrant les particules de 20 à 30 nm enregistre une erreur respectant le protocole avec 4,3% de points hors limite pour les deux instruments lors de cette dernière campagne.

Régressions orthogonales

Les figures 5 et 6 ci-dessous représentent les valeurs des coefficients directeur de la droite de régression orthogonale pour chaque canal ainsi que pour le total des 6 canaux respectivement pour les instruments UFP2408 et 2409. Le canal 6 (200-800 nm) est donné à titre indicatif et de ce fait n'a pas été évalué.

Concernant les résultats de la première intercomparaison, seul un canal présente un coefficient directeur supérieur à 1,10. Il s'agit du canal 50-70 nm avec un coefficient de 1,23 pour l'UFP2408 (figure 6) et 1,20 pour l'UFP2409 (figure 7). Les autres canaux ont un coefficient compris entre 0,96 et 1,10, en considérant les deux instruments comparés au granulomètre de référence.

Les coefficients directeurs obtenus lors de la deuxième intercomparaison indiquent une nette surestimation (e.g. de 10 à 40%) pour les classes de taille les plus fines (20-30nm, 30-50nm et 50-70nm) et une sous-estimation (jusqu'à 20%) pour les classes de taille les plus grosses (>100nm).

Enfin, lors de la troisième intercomparaison, on constate une tendance à la sous-estimation pour l'ensemble des canaux (avec des coefficients directeurs globalement compris entre 0,8 et 1,0), sauf pour la classe de taille la plus petite (20-30 nm), cette dernière présentant une surestimation de l'ordre de 20% par rapport à la référence.

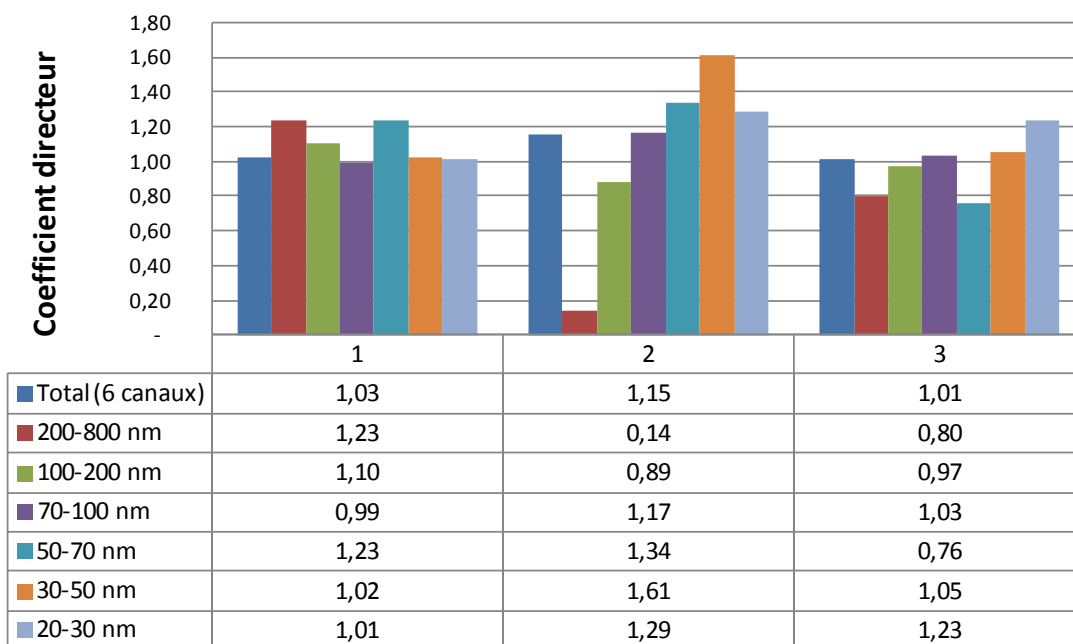


Figure 5 : Comparaison de l'UFP2408 avec le granulomètre TROPOS ; Coefficient directeur de la droite de régression orthogonale passant par l'origine

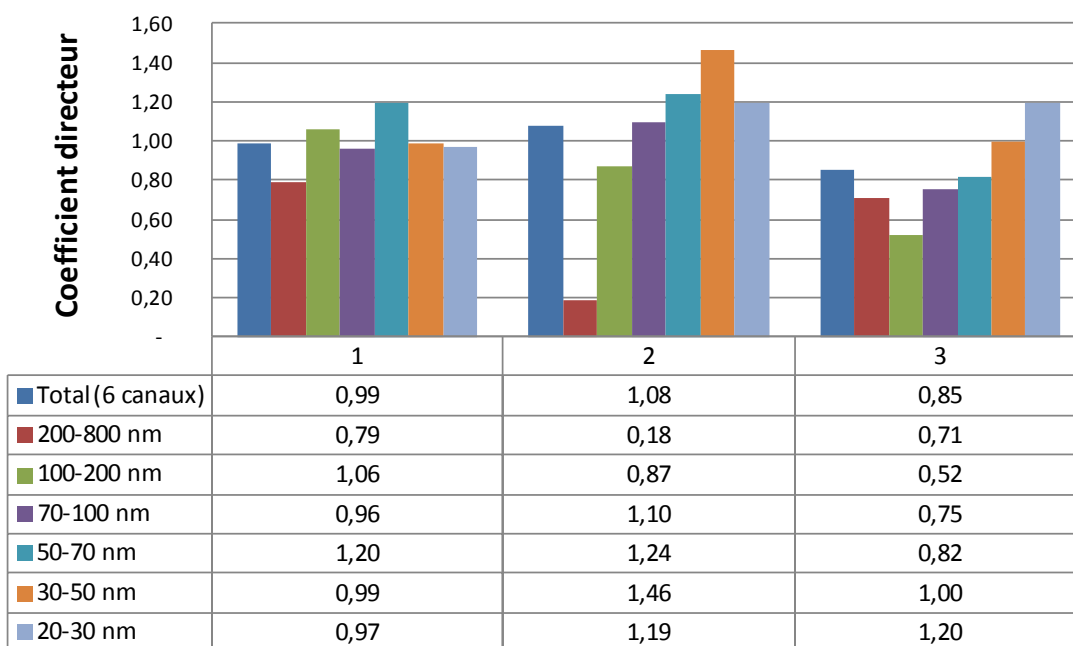


Figure 6 : Comparaison de l'UFP2409 avec le granulomètre TROPOS ; Coefficient directeur de la droite de régression orthogonale passant par l'origine

Ainsi, l'ensemble des résultats obtenus par comparaisons des deux UFP3031 d'Air Rhône-Alpes au SMPS TROPOS indiquent de nombreux écarts par rapport aux critères de succès initialement fixés avec le constructeur, ne permettant pas de considérer une équivalence entre ces différents types d'instrument. Il est cependant à noter qu'un coefficient directeur relativement proche de 1 (compris entre 0,85 et 1,15) a été obtenu pour chaque instrument et lors de chaque campagne, suggérant une possible utilisation dans le cadre d'une mesure *a minima* indicative.

3.2.2 Comparaison des deux UFP3031 entre eux

Ecarts point par point

La figure 7 ci-dessous représente le pourcentage de points dérivant de la limite fixée à 10% pour la comparaison des deux instruments entre eux.

Lors de la première intercomparaison, le canal 20-30 nm présente l'écart le plus important avec 31,3% de points insatisfaisants. Le canal 70-100 nm ne répond pas non plus au critère avec 8,3% des points hors limite.

Lors des deuxième et troisième intercomparaisons, aucun canal ne répond au critère fixé initialement. Néanmoins, comme au chapitre précédent, une tendance à l'amélioration est observée entre ces deux dernières campagnes, en particulier pour les canaux 20-30 nm, 50-70 nm et 70-100 nm.

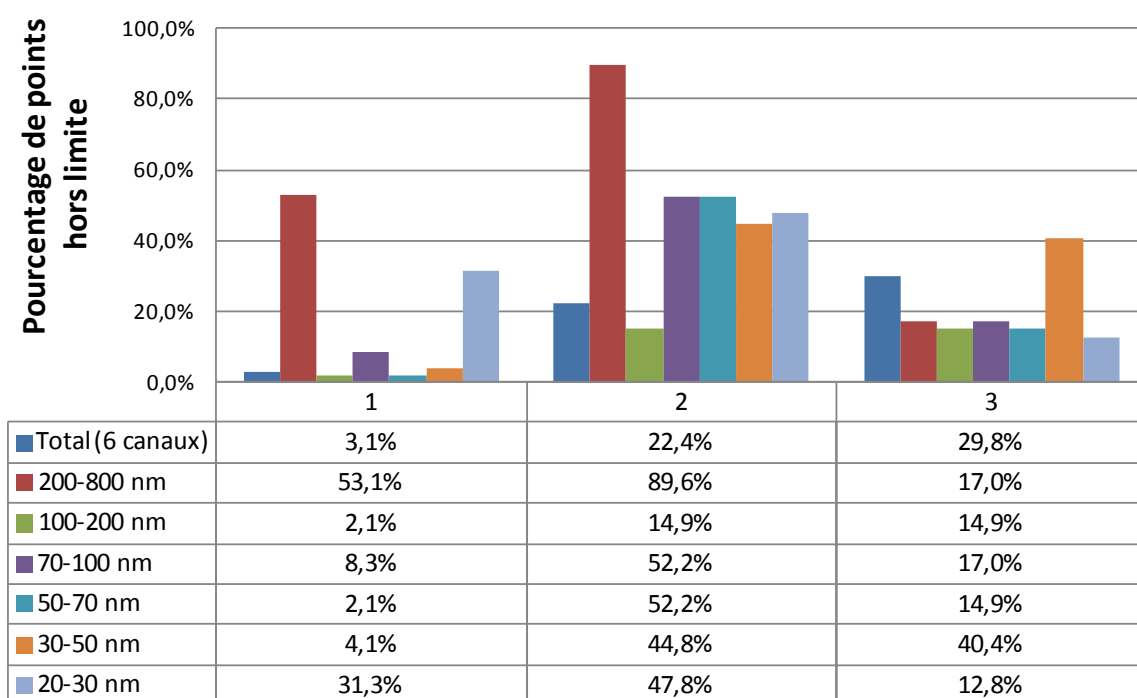


Figure 7 : Comparaison de l'UFP2408 avec et de l'UFP2409 ; Pourcentage de points mesurés hors de la marge d'erreur fixée par le protocole

Régressions orthogonales

La figure 8 représente les valeurs « inter-UFP » des coefficients directeurs pour chaque canal.

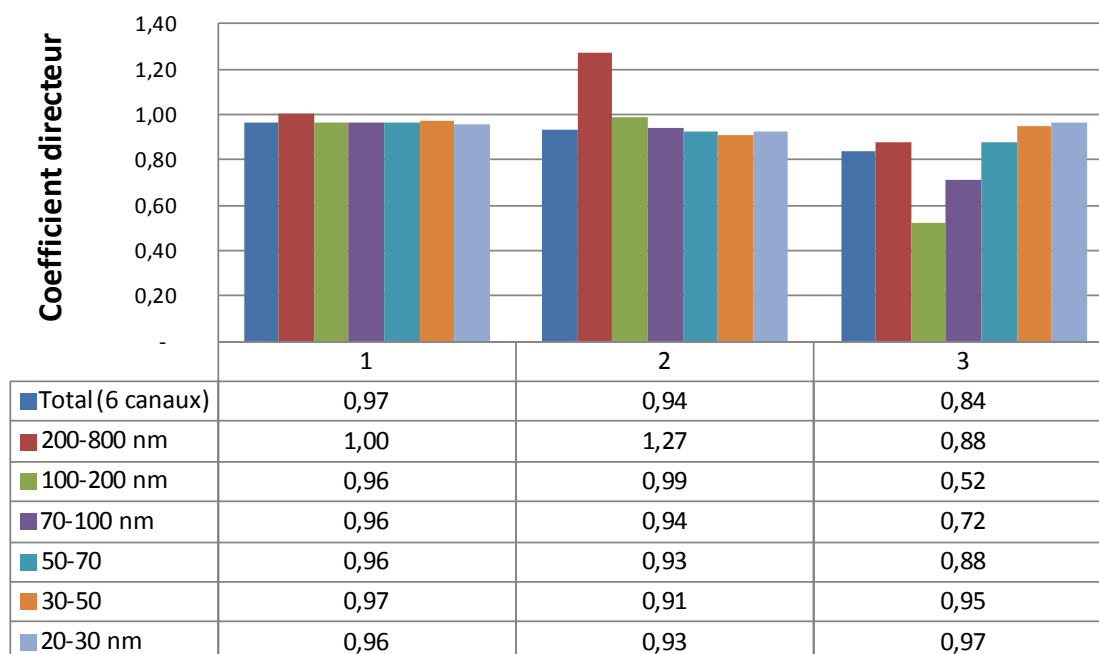


Figure 5 : Comparaison de l'UFP2408 avec de l'UFP2409 ; Coefficient directeur de la droite de régression orthogonale passant par l'origine

Les valeurs sont comprises entre 1,00 et 0,96 lors de la première intercomparaison. Une légère dégradation des résultats est observable lors de la deuxième intercomparaison avec des valeurs allant de 0,91 à 0,99. Cette tendance a été confirmée lors de la troisième intercomparaison réalisée en 2013, présentant également des résultats plus hétérogènes avec des valeurs de coefficient directeur variant de 0,52 pour le canal 100-200 nm à 0,97 pour le premier canal. Enfin, sans que cela est pu être expliqué, une déviation de l'ordre de 16% est observée entre les deux instruments pour la campagne de mars 2013, alors que cette déviation était limitée à 3% et 6% respectivement pour les campagnes de janvier 2012 et octobre 2012.

4. INTER-COMPARAISON EN STATION

Lors des trois campagnes d'intercomparaisons réalisées à Leipzig, les instruments ont été évalués en laboratoire. Cependant, lorsque cet instrument est installé en station, il est équipé d'une ligne de prélèvement (figure 9) et soumis à de multiples influences. Ainsi une campagne de mesure destinée à évaluer le comportement du système en conditions réelles de fonctionnement a été organisée durant la période du 26 juin au 10 juillet 2012 dans la station « La faïencerie » d'Atmo Picardie à Creil. Durant cette intercomparaison, deux UFP3031 appartenant à Air Rhône-Alpes (UFP2408 et 2409) et deux UFP3031 appartenant à Airaq (UFP2401 et 2402) ont été mis en œuvre. Le granulomètre de référence était un SMPS TSI installé par l'INERIS. Le SMPS a été configuré pour mesurer la même gamme de taille que les UFP3031 (de 20 à 800 nm)

Chaque instrument cité ci-dessus échantillonnait l'air ambiant via une ligne de prélèvement indépendante.

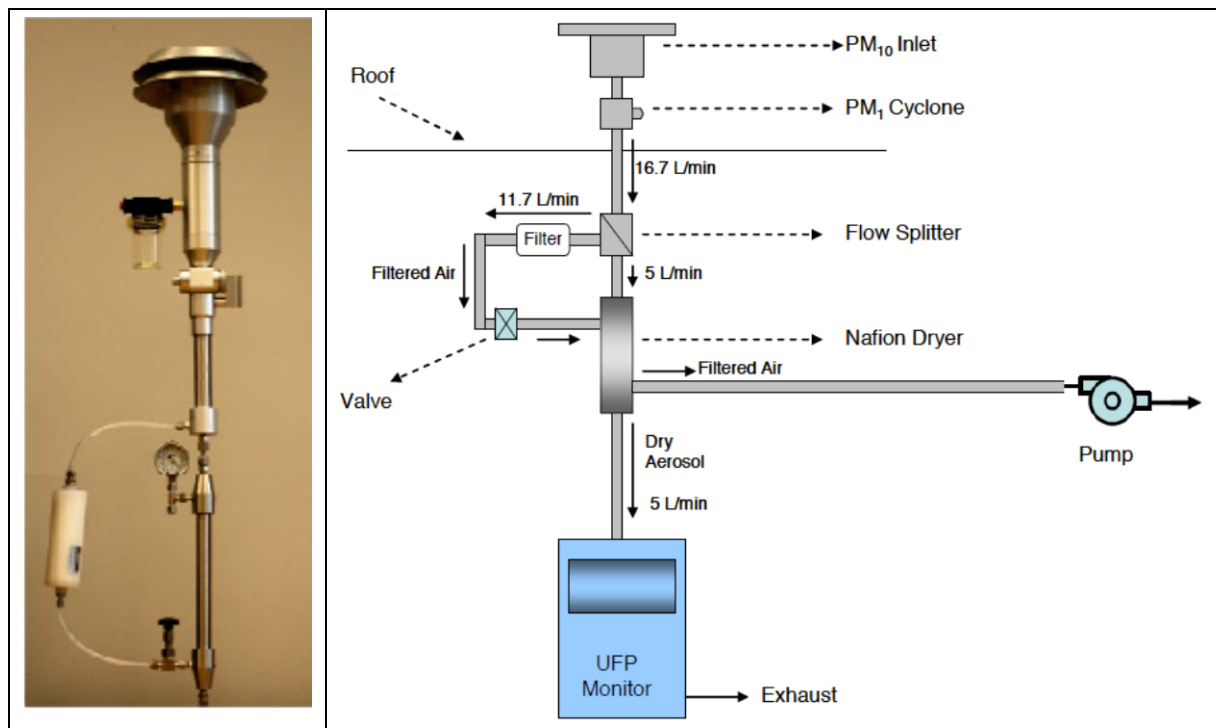


Figure 6 : Schéma de la ligne de prélèvement pour l'UFP3031

Cette ligne de prélèvement (figure 9 ci-dessus) est composée, de haut en bas, par une tête de coupure PM_{10} , d'un cyclone PM_1 et d'une membrane Nafion® destinée à réduire l'humidité relative. Une pompe installée sur un circuit parallèle permet d'ajuster le débit en tête de ligne à 16,7 l/min et permet également d'assurer le contre flux nécessaire à régénération de la membrane Nafion. Lors du montage effectuée, le diamètre du tube entre le cyclone PM_1 et la membrane Nafion a été réduit à 3/8 de pouce pour permettre le passage du toit. Cette modification concerne les cinq lignes de prélèvement.

Les suivis temporels des concentrations mesurés par les instruments Air Rhône-Alpes et Airaq sont représentés sur les figures 10 et 11. Les valeurs mesurées par le SMPS sont également reportées sur les deux figures pour assurer la comparaison. Le protocole d'intercomparaison utilisé lors des essais en laboratoire n'a pas été utilisé dans cet exercice, l'instrument de référence n'étant pas le même.

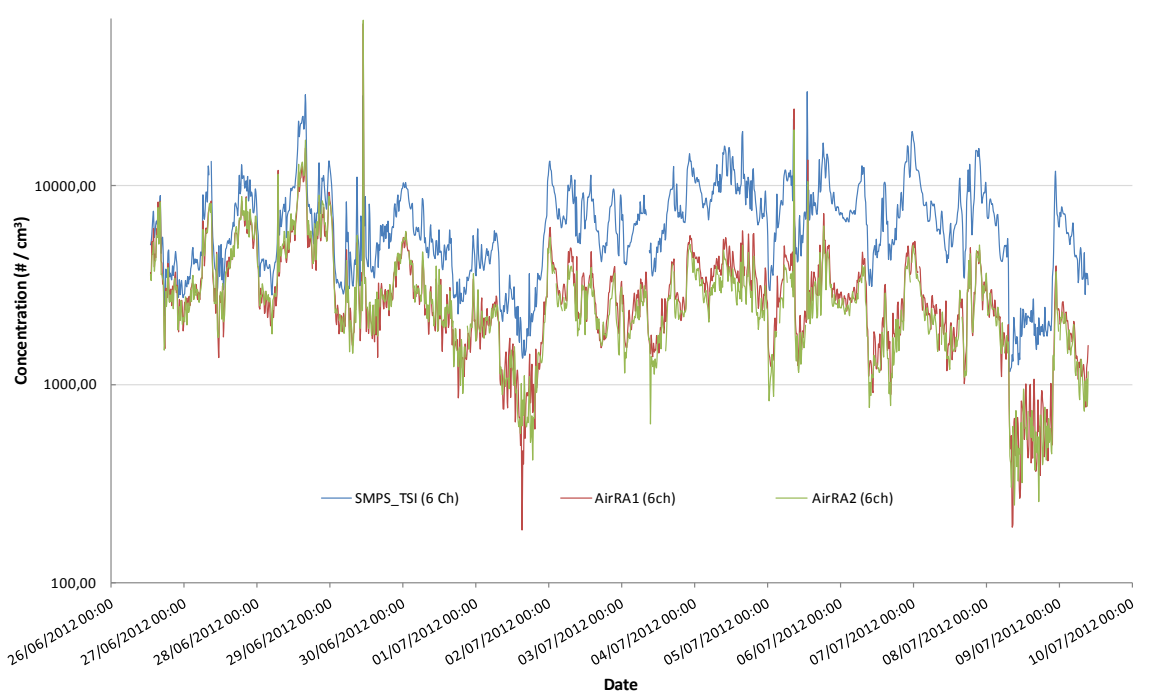


Figure 7 : Suivi temporel des concentrations totales des UFP2408, 2409 (respectivement AirRA 1 et 2) et du SMPS TSI

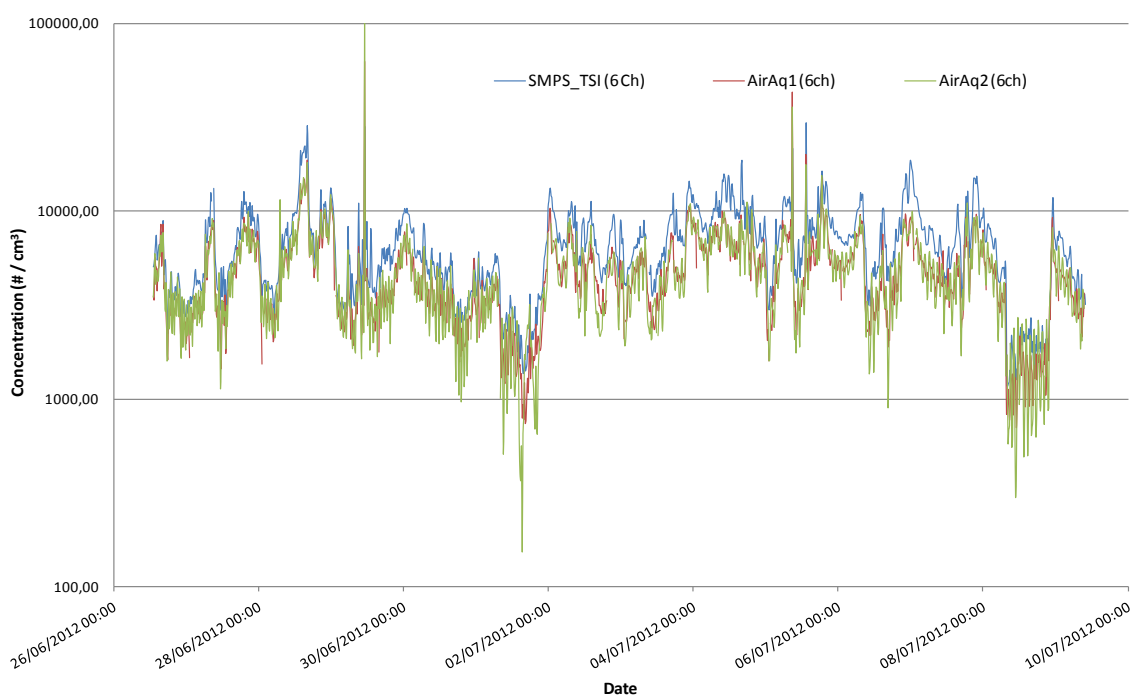


Figure 8 : Suivi temporel des concentrations totales des UFP2401, 2402 (respectivement AirAq 1 et 2) et du SMPS TSI

Sur les deux figures ci-dessus, le SMPS est représenté en bleu. Durant la toute première partie de l'exercice, du 26/06 au 29/06, les instruments ont un écart relatif faible avec le SMPS, même si une tendance à la sous-estimation est visible. Les instruments UFP2401 et 2402 (AirAq) représentés sur la figure 11 ont un écart relatif à peu près constant oscillant autour de 30% durant toute la période de mesure (figure 12 ci-dessous). En revanche, les deux instruments UFP2408 et 2409 (Air Rhône-Alpes en bleu et violet sur la figure 12 ci-dessus) montrent une dérive dans le temps. Durant l'ensemble de l'exercice d'intercomparaison, l'écart relatif s'est accentué allant jusqu'à -70% en fin de période de mesure. Après discussions avec le constructeur, un problème d'encrassement du chargeur (utilisé pour l'équilibre des charges électriques sur les particules en amont de l'électromètre) a été mis évidence sur ces instruments.

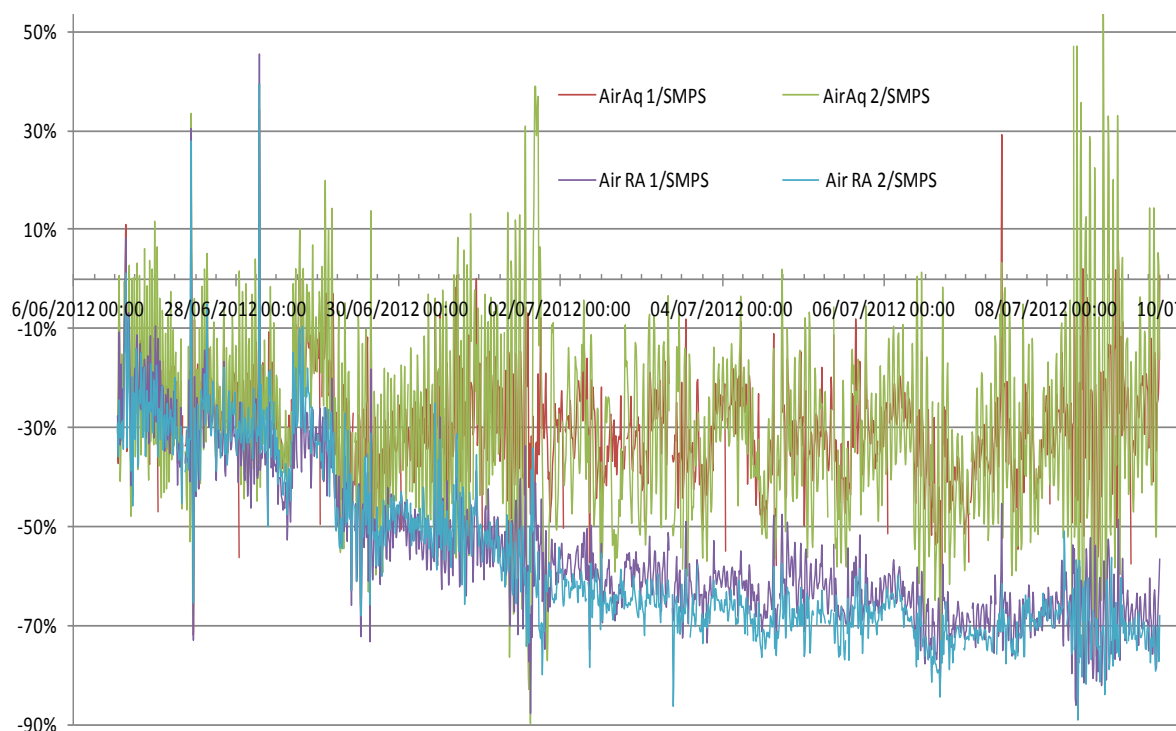


Figure 9 : Suivi temporel du pourcentage des écarts relatifs des UFP3031 par rapport au SMPS TSI

Ainsi, comme pour les intercomparaisons en laboratoire, des écarts significatifs avec les mesures par SMPS sont constatés. On note en revanche un bon accord relatif pour les différents couples d'analyseurs d'Air Rhône-Alpes et d'AirAq. D'un couple à l'autre, l'inhomogénéité des protocoles de calibration (e.g., à l'aide du SMPS TROPOS pour les instruments d'Air Rhône-Alpes et du SMPS TSI pour ceux d'AirAq) pourrait engendrer une différence de comportement d'un site de mesure à l'autre en fonction des situations.

5. CONCLUSION

En 2012 et 2013, les travaux du LCSQA sur les particules ultra-fines ont essentiellement porté sur la préparation et la réalisation d'exercices d'intercomparaison des granulomètres de type UFP3031 commercialisés par TSI. Quelques uns de ces analyseurs sont actuellement testés par différentes AASQA (Air Rhône-Alpes, AirAq et Air PACA). Leur mise en œuvre en station est relativement simple mais plusieurs cas de pannes ou de mal-fonctionnement ont été observés pour les instruments d'Air Rhône-Alpes et d'AirAq. La maintenance du chargeur est notamment un point crucial pour le contrôle qualité des mesures.

Trois intercomparaisons en laboratoire ont été organisées à l'institut TROPOS (Leipzig, Allemagne). Cet institut dispose en effet d'un granulomètre considéré comme méthode de référence par la communauté scientifique européenne. Une intercomparaison a également été organisée à Creil dans une station d'Atmo Picardie afin d'évaluer le comportement des analyseurs et de leur ligne de prélèvement en conditions réelles d'utilisation.

Les résultats des intercomparaisons en laboratoire, entre deux UFP3031 et le SMPS de TROPOS à Leipzig ont montré que plusieurs critères ne sont pas respectés par rapport au cahier des charges annexé à la commande des appareils par Air Rhône-Alpes. En particulier, les campagnes d'octobre 2012 et mars 2013 indiquent une forte dispersion des mesures ainsi que de nettes tendances à la sous-estimation du nombre de particules supérieures à 100 nm et à la surestimation du nombre des particules les plus fines pouvant être mesurées par l'UFP3031 (20-30 nm). Néanmoins, les exercices de corrélations effectués sur le nombre total de particules compris entre 20 et 200 nm sont relativement satisfaisants, avec des coefficients directeurs compris entre 0,85 et 1,15 pour chaque campagne et chaque instrument.

Concernant les tests de reproductibilité, l'inhomogénéité des protocoles de calibration (e.g. à l'aide du SMPS TROPOS pour les instruments d'Air Rhône-Alpes et du SMPS TSI pour ceux d'AirAq et Air PACA) pourrait engendrer une différence de comportement d'un analyseur à l'autre en fonction des situations. En revanche, un bon accord relatif est observé au sein des deux couples d'analyseurs (ceux d'Air Rhône-Alpes d'un côté, et ceux d'AirAq de l'autre côté) ayant été soumis à un même protocole de calibration.

L'ensemble de ces résultats indiquent que les appareils 3031 semblent pouvoir fournir des informations utiles et suffisamment fiables pour la mesure indicative en station, sous réserve d'une optimisation de leurs protocoles de maintenance et de contrôle qualité et de l'homogénéisation de leur procédure de calibration. Les travaux 2014 porteront en particulier sur ces points d'améliorations.

LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation	Nbre de pages
Annexe A	Compte-rendu de la réunion « PUF » du 20 Avril 2012	2
Annexe B	Compte-rendu de la réunion « PUF » du 22 Octobre 2012	3
Annexe C	Compte-rendu de la réunion « PUF » du 10 Avril 2013	3
Annexe D	Compte-rendu de la réunion « PUF » du 18 Juin 2013	3

Annexe A

Compte-rendu de la réunion « PUF » du 20 avril 2012

Présents :

AIRPARIF : Véronique Gherzi (service Etude), Laurent Gauvin (métrologie) [AM]

AIRAQ : Patrick Bourquin (Direction)

AIR-RhôneAlpes : A. Thomasson (responsable Etudes)

LCSQA / INERIS : Laure Malherbe et Olivier Favez [matin], Olivier Le Bihan, Aurélien Ustache

Ordre du jour :

1. CR de la réunion précédente

- remarques ?
- passage en revue pour rappel

2. actions régionales ; axes "santé" et "trafic" :

- avancement
- Grenoble : aspect NM
- cardio PUF : présentation, possibilité de participation au comité de pilotage

3. fiche LCSQA

- rappel du contenu 2012
- avancement

4. instrumentation (animation : AUs)

- retour d'expérience d'Air RA
- retour d'expérience d'Airaq
- intercomparaisons : résultats de la première intercomparaison, perspectives (dont seconde intercomp)
- recommandations en matière de validation des données : validation technique, validation environnementale

Points 1 et 3 :

Passage en revue bref du CR d'octobre : le tableau d'action se situe en fin de CR. Les actions 1 à 4 et 6 ont été menées à terme ; l'action 5 est décalée dans le temps (cf. plus loin dans le texte).

Rappel rapide par O. Favez de la fiche 2012.

Points 2 :

- avancement AIRAQ : les deux appareils sont livrés (1,5 mois de retard). Relation client de TSI relativement confuse.
- avancement AIR RA : les deux appareils sont sur le site « Des Frênes » et produisent des données depuis le 6 avril. Une panne de carte flash a eu lieu (les cartes des 2 appareils ont été changées). Attente d'autorisation pour le second site.

Une action « Minatec » (« NM » = nanomatériaux) en cours de réflexion.
Préalable : constituer une base « air ambiant urbain de fond ». Action 7 et 9.

- cardio PUF : présentation par O. Le Bihan et P. Bourquin de ce projet en cours de dépôt à l'ANSES. Cf. lettre d'intention, en pièce attachée.

Cette action est le résultat de l'action 4 : une réunion a été menée en début d'année pour évaluer la faisabilité d'une exploitation « santé » des futures données de PUF. Les experts rassemblés par Patrick Brochard, ont mis en évidence l'intérêt des données mesurées sur le long terme, ainsi que la possibilité de réaliser d'ores et déjà une étude de panel ; une action a immédiatement été lancée dans ce sens : le projet Cardio PUF, qui a été retenu en première lecture dans le cadre de l'AP ANSES. Perspectives : préparation d'un document pour le second tour (probabilité de succès e 1 sur 3 environ).

Intérêt exprimé par les représentants d'AIRPARIF et AIR RA pour intégrer le comité élargi de cardio PUF. Cf. action 8 et 9.

Annexe B

Compte-rendu de la réunion « PUF » du 22 octobre 2012

Présents :

AIRPARIF : Véronique Gherzi (service Etude), Hélène Marfaing, Christophe Debert, Laurent Gauvin (métrologie)

AIRAQ : Patrick Bourquin (Direction)

AIR-RhôneAlpes : A. Thomasson (responsable Etudes)

LCSQA / INERIS : Morgane Dalle, Olivier Le Bihan, Aurélien Ustache

Excusés : O. Favez (LCSQA/INERIS), B. Mesbah (Atmo PACA)

Ordre du jour :

1. actions régionales
 - présentation par chacun de l'avancement des différentes actions ; Atmo PACA
 - retour d'expérience sur l'utilisation de 3031

2. instrumentation (animation : AUs)
 - exercices d'intercomparaison : présentation des résultats ; bilan et perspectives
 - i. Leipzig 1 (janvier 2012) et Leipzig 2 (octobre 2012)
 - ii. Creil (juillet 2012)

3. retour d'expérience "pannes" sur le 3031 LCSQA (Morgane Dalle)

4. bilan et perspectives 2013
 - actions régionales
 - Leipzig 3 ?
 - 2ème intercomparaison à Creil
 - Système alternatif au 3031
 - Intérêt du comptage simple

Documents

Présentation sur avancement AIRAQ et Atmo RA ; point 2 et 3.

Présentation LCSQA/INERIS sur Rex pannes, et sur intercomparaisons.

Notes

DRC-14-144358-12629A

1. ACTIONS REGIONALES

Avancement RA

La présentation rappelle le plan de travail du projet régional, points passés et à venir.

Production de données : mesurage à la station « Les Frênes » depuis le 6 avril (avec au départ les deux appareils en parallèle), et au « parc Hoche » (moyen mobile) depuis le 7 juin ; participation aux différentes intercomparaisons (cf. point 2).

Un rapport à destination de la région est planifié pour fin décembre.

Nanomatériaux : seront plutôt abordés en 2013, notamment via une campagne de 6 mois aux abords de Minatec. Volet « microscopie » inclus.

Questions : quelle position adopter par rapport à TSI ? Maintenance : quel contenu ? Etc. (cf. dernière page de la présentation).

Avancement Airaq

Les deux appareils ont été livrés en juin 2012. Après avoir participé à l'intercomparaison de Creil, ils ont été installés à Talence (Bordeaux / urbain de fond) et Mourenx (zone industrielle de Lacq), fin juillet.

Questions : la proposition de maintenance faite par TSI n'est pas pratique car elle sous-entend un envoi des matériels chez le constructeur. Cela s'expliquerait par la nécessité de disposer d'un banc d'étalonnage avec génération de particules et présence d'un SMPS.

cardioPUF : ce projet, déposé à l'ANSES, a été très bien évalué scientifiquement. Malheureusement, il n'a pas été sélectionné parmi les projets à financer. Patrick Brochard, dans les semaines à venir, va prendre des contacts pour essayer de trouver une solution alternative.

A l'occasion de la discussion qui suit, H. Marfaing souligne l'importance du lien pollution/santé.

Avancement AIRPARIF

Pour des raisons de financement, cette thématique n'est pas prévue au budget 2013, malgré un intérêt clair pour le PSQA.

Véronique réactive l'idée d'une réunion à mener avant la fin de l'année, pour évaluer des scénarios. → action 5 actualisée.

Avancement PACA (non présents au GT)

PACA a investi dans un appareil. Il serait important qu'ils participent aux prochaines réunions du GT.

2. INSTRUMENTATION

Nota : AUs indique que le programme européen ACTRIS a décidé de ne pas valider le 3031 pour ses activités de recherche.

Résultats des intercomparaisons

Leipzig 1 (rappel) : les critères de performance sont respectés seulement pour partie. Il a été décidé de reporter la décision aux intercomparaisons suivantes.

Creil : non-contractuelle. Mise en évidence d'une dérive dans le temps pour les appareils RA : problème de membrane NAFION ? Perspectives LCSQA : reproduire cet exercice en 2013 dans une station ou un moyen mobile doté de passages de toit permettant l'installation de la ligne de prélèvement complète, la station de creil ne permettant pas d'utiliser la même section de tube de prélèvement.

Leipzig 2 : en cours. Mise en évidence d'un mauvais réglage constructeur datant de mars (matrice d'étalonnage) mais gérable (on peut corriger les données). → bilan, action 16

La décision vis à vis de la conservation des matériels sera prise en janvier après l'EIL de Leipzig 3 et que l'on en aurait une vision un peu plus claire lors de la conférence téléphonique du 9 novembre après avoir reçu les résultats EIL de Leipzig 2.

CEN

La norme « concentration en nombre » est avancée à 75%.

La norme « mesure de la distribution en taille » n'est pas commencée.

Position vis-à-vis de TSI

Le bilan des intercomparaisons ne permet pas de conclure de manière satisfaisante. Pour autant, les participants ne souhaitent pas entrer d'ores et déjà dans une démarche de refus des analyseurs. Alexandre propose de discuter avec TSI pour que la décision reste en suspens en l'attente des résultats de la troisième intercomparaison à Leipzig. → action 15

3. RETOUR D'EXPERIENCE SUR LES PANNES

- Rex LCSQA : 18 mois satisfaisants (2009-2010) puis sur 2011, 3 pannes entraînant des arrêts de plusieurs semaines du mesurage.
- Rex Atmo RA : un remplacement de carte flash. Observation d'une dérive conjointe des deux appareils lors de l'intercomparaison de Creil avec curieusement synchronisation des deux appareils (bien qu'ils ne soient pas sur la même ligne de prélèvement) : perte de performance progressive des membranes nafion ? Chute de performance pour l'un des appareils lors de l'intercomparaison Leipzig 2 : problème de salissure de l'aiguille du système « couronne » ?
 - Rex Airaq : ras à ce jour.

Perspectives 2013

LCSQA : l'effort se portera sur le support instrumental. Arrêt du mesurage à Gennevilliers.

Annexe C

Compte-rendu de la réunion « PUF » du 10 Avril 2013

Présents :

AIRAQ : Patrick Bourquin, Pierre-Yves Guernion

AIR-Rhône-Alpes : A. Thomasson

AIRPARIF : Hélène Marfaing, Véronique Gherzi, Laurent Gauvin, Christophe Debert

Air PACA : Boualem Mesbah

LCSQA / INERIS : Aurélien Ustache & Olivier Favez (matin)

1. Validation du CR de la dernière réunion (22/10/2012) et de l'état d'avancement du planning d'actions

CR validé en l'état.

La discussion s'engage sur le lien entre les objectifs des études en cours et les travaux européens de normalisation sur la mesure de la concentration en nombre et la granulométrie des PUF.

Rappels : le diamètre minimal considéré par ces derniers travaux est de 7nm ; or l'UFP-3031 de TSI ne détecte les particules qu'à partir d'un diamètre >20nm ; Cependant, à l'heure actuelle, il n'existe aucun appareil capable de répondre à tous les aspects de la norme envisagée.

2. Retour sur les 3 intercomparaisons à Leipzig

Présentation des résultats des 3 exercices d'intercomparaisons réalisés à Leipzig, ainsi que les modalités de leur protocole de traitement de données (cf. diaporama). Les deux premiers exercices ont eu lieu en Janvier et Octobre 2012, et comprenaient uniquement les deux UFP 3031 d'Air Rhône-Alpes (à comparer au SMPS de l'IfT-TROPOS). Le troisième exercice, qui s'est déroulé en mars 2013, incluait les 2 mêmes instruments d'Air RA, plus les 2 appareils UFP-3031 d'AirAq.

A noter pour le 2^{ème} exercice : Au bout du 2^{ème} jour, Andreas Szchoppe (TOPAS), par un examen visuel sur les paramètres de configuration, s'est aperçu que les instruments étaient configurés avec une mauvaise matrice de correction (celle du Sulfate d'Amonium au lieu de la matrice de calibration initiale), et ce a priori depuis un changement de carte flash survenu au mois d'avril 2012 ; Il a donc reconfiguré correctement la matrice et renvoyé par mail toutes les données antérieures recalculées avec la bonne matrice ; L'intercomparaison a repris son cours, mais l'appareil d'Air RA (S/N 2409) a connu une défaillance au bout de quelques jours (résultats anormalement bas par rapport aux autres) ; Andreas a trouvé l'origine du problème, en nettoyant une poussière sur l'aiguille de Corona dans le chargeur à diffusion ; Finalement, il y a eu seulement 67 données horaires exploitables.

A noter pour le 3^{ème} exercice : Comme lors de l'exercice précédent, l'appareil d'AIR RA (S/N 2409) a connu le même genre de défaillance au bout de quelques jours de fonctionnement ; il a donc été demandé à Andreas Szchoppe (TOPAS) de procéder à un nettoyage des appareils ; la campagne a été prolongée de quelques jours pour obtenir un nombre suffisant de données (objectif minimum : 100 données horaires), mais le même appareil a de nouveau été défaillant après quelques jours (67 données horaires exploitables contre 164 h obtenues pour les autres).

Commentaires sur les résultats : Alors que le 1^{er} exercice avait donné des résultats globalement satisfaisants, les résultats obtenus lors du 2^{ème} et 3^{ème} exercice sont beaucoup plus mitigés. D'une manière générale, le nombre de points « outlayers » (en dehors des critères et donc non validés pour le traitement de données) diffère d'une intercomparaison à l'autre, ce qui semble indiquer un manque de stabilité des résultats de mesures.

Les incertitudes pouvant être associées à ces « écarts de protocole » sont quasi impossibles à déterminer. Les régressions orthogonales des deux dernières intercomparaisons présentent des résultats non-satisfaisants au regard des critères définis au sein du protocole de traitement de données (incertitudes relatives de l'ordre de $\pm 20\%$ selon les canaux). Néanmoins, ces mauvais résultats restent acceptables si l'on considère les critères généralement fixés pour la mesure indicative (50%).

Conclusions du LCSQA : Le non-respect de certains des critères définis au préalable avec TSI (du point de vue des résultats de comparaisons mais également du suivi du protocole expérimental) conduit le LCSQA à se positionner défavorablement, en l'état, à un éventuel déploiement additionnel d'UFP 3031 au sein du dispositif national.

Conclusions des AASQA : Ces résultats posent donc la question d'un éventuel remplacement de l'UFP-3031 par un autre instrument (CPC), tel que défini par les clauses contractuelles pour Air RA et AirAq. Les AASQA ont conscience que cette solution présenterait des inconvénients, mais elles en accepteraient a priori les conséquences. La décision est prise unanimement de garder les appareils UFP-3031 à la seule condition que TIS/TOPAS propose un contrat de maintenance annuel à un tarif raisonnable, comprenant 1 calibration (avec le SMPS de TSI) et 1 an de garantie avec échange des pièces défectueuses et garantissant également un soutien logistique sur place en cas de pannes, plus le développement de moyen de contrôles permettant de surveiller d'éventuelles dérives des mesures dans le temps.

3. Position vis-à-vis de TSI/TOPAS

Nécessité d'organiser une réunion avec les représentants de TSI France, TSI Europe et TOPAS pour présenter les résultats et discuter des conditions pour garder les UFP-3031 au sein des AASQA.

Le GT considère que l'option « abandon du 3031 » ne peut être totalement exclue, mais ne sera évoquée qu'en dernier recours lors des nouvelles négociations avec TSI. Ces négociations devront inclure l'élaboration d'un contrat de maintenance annuel (< 3k€, alors qu'un devis actuel se situe autour de 4.5k€). Elles porteront également sur une évolution du software permettant un suivi QA/QC en routine de paramètres de contrôle de l'instrument, ainsi que des protocoles d'entretien détaillés.

4. Avancement des différents projets régionaux

Chacun rappelle son implication sur différents projets régionaux.

Ces travaux seront à insérer dans le cadre de la future stratégie nationale de surveillance et d'amélioration des connaissances sur les PM.

5. Perspectives de travail

Il existe a priori une bonne complémentarité entre la surveillance des PUF et celle du « Black Carbon ». Ces deux paramètres représentent notamment des indicateurs vraisemblablement pertinents des impacts sanitaires des PM. La mesure du « Black Carbon » semble néanmoins plus simple (robustesse du matériel) et riche d'information (séparation des sources « fuel fossile » et « combustion de biomasse »). Néanmoins, contrairement à la mesure en nombre, la surveillance du « Black Carbon » ne permet pas de documenter l'importance de phénomènes de nucléation et de formation secondaire.

Annexe D

Compte-rendu de la reunion « PUF » du 18 Juin 2013

AGENDA

- CREIL INTERCOMPARISON RESULTS PRESENTATION
- FEEDBACK ON TROUBLE SHOOTING
- DISCUSSION
- DECISION MAKING (AASQA/TSI contract)
- Any other business

PARTICIPANTS

- | | |
|-----------------------|--------------------------------|
| • Thomas KRINKE | TSI |
| • Eric FILIMUNDI | TSI |
| • Andreas ZSCHOPPE | TOPAS |
| • Patrick BOURQUIN | AirAq (French AASQA) |
| • Alexandre THOMASSON | Air Rhône-Alpes (French AASQA) |
| • Aurélien USTACHE | LCSQA/INERIS |

- INTERCOMPARISON RESULTS PRESENTATION

The intercomparison protocol has been reminded and the intercomparison results have been shown and discussed.

Conclusions for INERIS: regarding to the protocol, the 3 inter-comparisons were not totally successful because all the criteria are not validated.

Conclusions for AIR Rhône-Alpes and AIRAQ: regarding the contract with TSI, the “CPC exchange” is still an option.

- FEEDBACK ON TROUBLE SHOOTING

AIR Rhône-Alpes and AIRAQ have presented their positive and negative points after 1 year using the UFP3031, and also advantages/disadvantages of “CPC exchange” option.

For them, even if the inter-comparisons were not successful, the UFP monitoring technology is interesting. But the UFP3031 needs software and hardware evolutions or updates to be considered as a totally developed product. For example, the charger was identified to be the main issue in the UFP3031. This part is very sensitive to the dust or any organic component but cleaning the charger is still a difficult task. In another hand, the UFP3031 is like a “black box” and it’s difficult for users today to know if the system is working correctly.

AIR Rhône-Alpes and AIRAQ have explained that they could accept to keep the UFP3031 only if a TSI and TOPAS offer a real warranty for improvements in the instrument and for support and help in the yearly maintenance contract (see details in next part).

- **DISCUSSION and DECISION MAKING (AASQA/TSI contract)**

Regarding the intercomparaison results, Andreas ZSCHOPPE (TOPAS) would like to verify the data treatment and especially the channels comparisons between UFP and SMPS.

Decision 1: The entire raw file will be sent to the participants.

- **AASQA's need of improvements in UFP3031 monitoring:**

- to solve the several troubles coming from charger with corona needle
- to follow some more "technical" parameters, to be able to evaluate if something is going wrong during continuous monitoring

TSI first proposal was to buy a CPC to be able to prevent derivability of UFP3031, but it is not a solution for AirAQ and Air Rhône-Alpes.

Decision 2: TOPAS will propose a list of parameters to be able to check the instrument. These parameters will be added in a new software version.

Decision 3: A new charger design will be tested by TOPAS during autumn 2013.

The AASQAs agree to be partner of the test:

- ✓ Air-RA will organize the test in Grenoble in September (site : "Les Frênes")
- ✓ TOPAS will come with its own UFP3031 and proceed measurement in parallel

Decision 4: if the test is successful, Thomas KRINKE agrees for exchanging the new charger in the 6 French units of UFP3031 (2 AIR-RA + 2 AIRAQ + 1 INERIS + 1 AIRPACA).

AASQAs are asking if it will cause any additional costs?

Thomas KRINKE will answer after internal discussion with TSI engineering team...

- **AASQA's need of warranties for support and help:**

The actual TSI yearly contract for maintenance is too expensive for AASQAs, and they need some more warranties about the support and help that TSI or TOPAS will provide in this contract.

AASQA's demands are:

1 yearly contract for 6 units (2 AIR-RA + 2 AIRAQ + 1 INERIS + 1 AIRPACA)

Including:

- 1 Calibration (with TSI SMPS) + maintenance (it could be organized on 1 site in France)
- Help and maintenance on site for trouble shooting (by TOPAS?)
- Warranty for material including time and pieces exchange if not "usual" failure (without additional costs)

Costs: maximum 3000€/year/unit (Without Taxes)

DRC-14-144358-12629A

Decision 5: TSI will send a proposition for a yearly maintenance contract for all the French UFP3031 in this way.

The acceptance of TSI proposal for this yearly contract of maintenance and warranty is the new condition for AIR Rhône-Alpes and AIRAQ to accept to keep the UFP3031.

If not, they will ask for the “CPC exchange” option.

- **Any other business**

AIR Rhône-Alpes has explained that, few days before this meeting, they could see a problem with 1 UFP3031 (Serial N° 2409), with signal decreasing, as it happened at the last inter-comparison.

Decision 6: Andreas ZSCHOPPE propose to AIR-RA to send back the instrument to TOPAS, and he will repair it and send it back without additional cost.