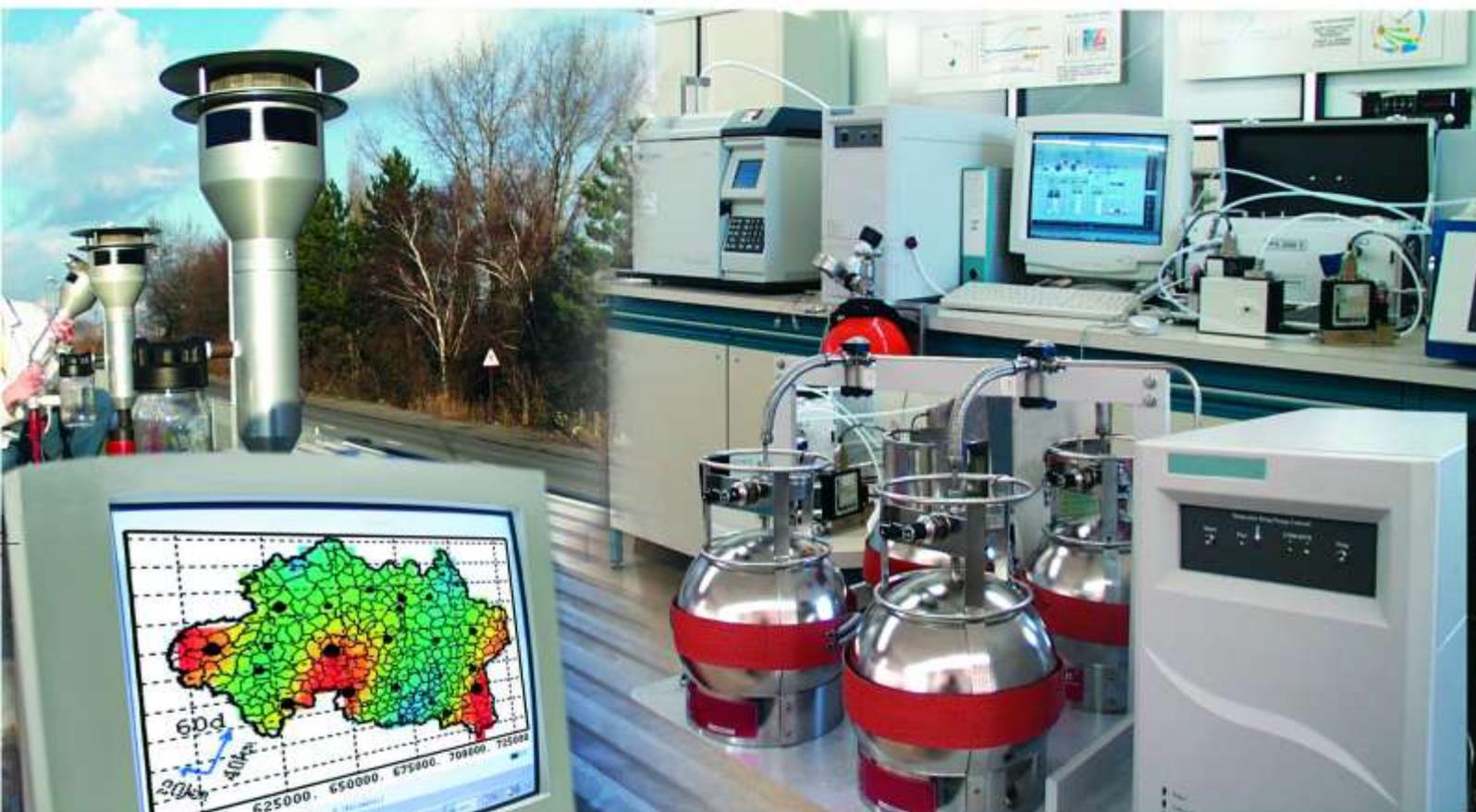




Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Métrologie des polluants non réglementés

Connaissance du nombre et de la distribution granulométrique des particules submicroniques -

Suivi dans le temps, métrologie : bilan des travaux 2003-2011

Décembre 2011

Programme 2011

O. LE BIHAN, L. MALHERBE, 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'École 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'Énergie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère de l'Écologie, du Développement durable, des Transports et du Logement. 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 MEDDTL 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.



Connaissance du nombre et de la distribution granulométrique des particules submicroniques Suivi dans le temps, métrologie : bilan des travaux 2003- 2011

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l’Air

Métrologie des polluants non réglementés

Programme financé par la
Direction Générale de l’Energie et du Climat (DGEC)

2011

O. Le Bihan, L. Malherbe, A. Ustache

Ce document comporte 39 pages (hors couverture et annexes)

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Olivier LE-BIHAN, Laure MALHERBE	Olivier AGUERRE- CHARIOL	Nicolas ALSAC
Qualité	Ingénieurs Direction des Risques Chroniques	Responsable de l’Unité « Innovation pour la Mesure » Direction des Risques Chroniques	Responsable du Pôle « Caractérisation de l’Environnement » Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

RESUME	6
1. INTRODUCTION	7
2. INSTRUMENTATION	8
2.1 Bilan de la période 2003 - 2010	9
2.2 Bilan des travaux sur le granulomètre 3031	13
2.2.1 Intérêt	13
2.2.2 Comparaison avec le SMPS	13
2.2.3 Premières conclusions sur le 3031	14
3. INTERPRETATION DES CAMPAGNES DE GENNEVILLIERS	14
3.1 Matériels et campagnes de mesure	15
3.2 Campagnes hivernales.....	17
3.2.1 Concentration en nombre	17
3.2.2 Distribution en taille	18
3.2.3 Cycle journalier	19
3.2.4 Discussion au vu de la bibliographie.....	21
3.3 Variations saisonnières	21
3.3.1 Données considérées	21
3.3.2 Statistiques élémentaires.....	21
3.3.3 Photochimie	25
3.4 Bilan	32
4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	36
5. VALORISATION	37
6. REFERENCES	38

RESUME

La surveillance du nombre, de la granulométrie et de la composition chimique des particules fines dans l'air ambiant apparaît comme un enjeu majeur pour une meilleure compréhension de l'impact sanitaire des aérosols. Il en va de même pour l'étude de leurs impacts climatiques. Ainsi, la communauté scientifique européenne s'est-elle engagée depuis quelques années dans des actions prospectives consacrées aux particules submicroniques.

C'est dans ce contexte que la présente action du LCSQA a été proposée dès 2003, avec pour objectif principal de documenter la situation française par la mise en œuvre *in situ* de techniques de comptage et de caractérisation de la distribution en taille.

Un axe majeur de cette action a consisté, en collaboration avec AIRPARIF, à assurer un suivi des particules submicroniques sur le site de fond urbain de Gennevilliers, lors de campagnes de mesure hivernales reconduites annuellement. Des campagnes estivales ont également été réalisées ponctuellement sur ce site afin d'étudier la variabilité saisonnière des sources et des processus de formation. Ces travaux mettent en évidence les rôles majeurs joués par le trafic automobile et, en été, par les processus photochimiques, sur les niveaux de concentrations de particules ultrafines (PUF) en région parisienne.

Dès 2003, cette action a été menée sous la forme d'une campagne hivernale de 5 semaines, effectuée à l'aide de granulomètres de laboratoire de type SMPS (10 – 500 nm) et APS (0,5 μm – 20 μm). A partir de 2009, nous avons cherché à allonger le temps de mesurage, afin de bénéficier d'une meilleure assise statistique : pour ce faire, nous avons porté nos efforts sur l'étude d'un nouveau granulomètre développé spécifiquement pour la surveillance en air ambiant, le 3031 (société TSI).

A ce stade, et étant donné les difficultés posées par l'utilisation de sources radioactives sur le territoire national, le 3031 semble être l'instrument le plus indiqué pour les activités de surveillance. La réflexion n'est cependant pas close, avec notamment l'émergence de nouvelles pistes instrumentales (compteur à eau), mais aussi le besoin de poursuivre les exercices de comparaison avec un SMPS et de recueillir de nouveaux retours d'expérience.

Différentes AASQA développent désormais des actions régionales sur les particules ultrafines. A leur demande, le LCSQA/INERIS fait évoluer son activité sur les particules submicroniques en développant une activité de support. Il s'agira tout particulièrement pour 2012, d'organiser des exercices d'intercomparaison visant à mieux connaître les performances du granulomètre 3031 ainsi qu'à veiller à l'homogénéité des mesures réalisées au sein du dispositif national (en particulier en Ile de France, Rhône-Alpes, Aquitaine et PACA).

1. INTRODUCTION

Les particules en suspension (ou aérosols) représentent aujourd'hui la classe de polluants atmosphériques la plus préoccupante en matière de santé publique et d'impact environnemental. Les valeurs limites fixées par les réglementations actuelles se réfèrent essentiellement à leurs concentrations massiques. Cependant, diverses études toxicologiques et épidémiologiques mettent en évidence le rôle prépondérant joué par d'autres facteurs. En particulier, la surveillance du nombre, de la granulométrie et de la composition chimique des particules fines dans l'air ambiant apparaît comme un enjeu majeur pour une meilleure compréhension de la toxicité des aérosols. Il en va de même pour l'étude de leurs impacts climatiques.

Ainsi, la communauté scientifique européenne s'est-elle engagée depuis quelques années vers des actions prospectives consacrées aux particules submicroniques.

En matière de métrologie et de qualité de la mesure, des actions sont menées tant dans le domaine de la recherche que dans le domaine de la normalisation. Ainsi, un groupe de travail (GT 32) a 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 ; les réseaux EUSAAR et EMEP s'attachent également à la réalisation de mesures de qualité de ces paramètres sur un nombre croissant de sites européens (documents communs de référence sur la qualité de la mesure, intercomparaisons, etc.).

C'est dans ce contexte que la présente action du LCSQA a été proposée dès 2003, avec pour objectif principal de documenter la situation française par la mise en œuvre *in situ* de techniques de comptage et de caractérisation de la distribution en taille.

En collaboration avec AIRPARIF, le LCSQA/INERIS assure depuis lors un suivi des particules submicroniques sur le site de fond urbain de Gennevilliers, lors de campagnes de mesure hivernales reconduites annuellement. Des campagnes estivales ont également été réalisées ponctuellement sur ce site afin d'étudier la variabilité saisonnière des sources et des processus de formation des particules ultrafines (PUF).

Dès 2003, cette action a été menée sous la forme d'une campagne hivernale de 5 semaines, effectuée à l'aide de granulomètres de laboratoire de type SMPS (10 – 500 nm) et APS (0,5 µm – 20 µm). A partir de 2009, nous avons cherché à allonger le temps de mesurage, afin de bénéficier d'une meilleure assise statistique : pour ce faire, nous avons porté nos efforts sur l'étude d'un nouveau granulomètre développé spécifiquement pour la surveillance en air ambiant, le 3031 (société TSI).

Au cours de ces neuf années, l'action du LCSQA/INERIS sur les particules submicroniques a également permis la réalisation de campagnes de mesure ponctuelles permettant l'étude de problématiques locales (à Douai en 2004 [Le Bihan et Mathé 2005], La Mède en 2006 [Le Bihan et Malherbe 2006 et 2008] et Port Saint Louis en 2010 [Note indépendante à venir]). Elles ne sont pas abordées ici.

Le présent rapport présente les résultats obtenus depuis 2003, concernant l'instrumentation (chapitre 2) et le suivi dans le temps sur le site de Gennevilliers (chapitre 3).

2. INSTRUMENTATION

L'instrumentation a été l'objet d'un travail continu depuis la création de la fiche en 2003.

Un bilan général est proposé dans le chapitre 2.1.

Il est complété par un chapitre (2.2) dédié au granulomètre 3031. En effet, cet instrument est apparu dans notre programme de travail à la fin des années 2000, pour y prendre une part grandissante notamment sur le site de Gennevilliers. Par ailleurs, des AASQA développent depuis 2011 des programmes de travail spécifiques aux particules ultrafines, programmes à ce jour basés sur l'utilisation du 3031.

Les caractéristiques principales des deux granulomètres considérés dans cette étude, le SMPS et le 3031, sont résumées et comparées dans le Tableau 1.

Tableau 1 : granulomètres SMPS et 3031 - informations et comparaison

	SMPS	3031	Commentaire
Nombre de canaux	64	6	Nécessité de vérifier que le nombre de canaux du 3031 est suffisant pour observer les phénomènes. → avantage SMPS
Gammes en taille	10 nm à 500 nm	20 – 800 nm	Les phénomènes de nucléation sont observables à partir de quelques nanomètres. Le démarrage en taille à 20 nm n'empêcherait pas l'observation du phénomène, mais porterait sur une partie réduite du spectre en taille. → avantage SMPS
Source radioactive	oui	non	L'utilisation d'une source radioactive est problématique en France. → avantage pour le 3031
Butanol	oui	non	L'alimentation en butanol nécessite un passage bi- voire tri-mensuel. Il peut être malodorant. → avantage pour le 3031

	SMPS	3031	Commentaire
Maintenance	bi-mensuelle	Mensuelle	→ avantage pour le 3031
Conception / Utilisation	Version commerciale conçue pour utilisation en laboratoire	Conçu pour la mesure en continu en air ambiant	→ avantage pour le 3031
Ligne de prélèvement	Pas de ligne spécifique à l'origine	Développée spécifique pour la mesure en air ambiant	Si la ligne a été développée pour le 3031, elle pourrait être utilisée pour le SMPS.

2.1 BILAN DE LA PERIODE 2003 - 2010

Le Tableau 2 propose une synthèse de l'avancement des travaux et de la réflexion d'un point de vue instrumental.

En résumé, la tenue de campagnes orientées sur la taille et le nombre est un acquis : nous disposons d'outils et de procédures à même de permettre des actions sur 1 à 2 mois (cas du SMPS), voire au-delà (cas du 3031).

La mesure de surface spécifique a été considérée : d'un point de vue opérationnel, des améliorations sont nécessaires pour disposer d'un appareil réellement adapté à l'étude de la qualité de l'air sur des durées de plusieurs semaines. D'un point de vue instrumental, la mesure est indirecte : l'appareil relève plus d'un indicateur que d'une mesure absolue.

Un certain nombre de contraintes du SMPS (sources radioactives, butanol, cf. Tableau 1) ont déterminé l'intérêt porté à un nouveau produit, le 3031, conçu spécifiquement pour la surveillance. Il est désormais considéré comme une alternative très sérieuse au SMPS.

En ce qui concerne la qualité de la mesure, nous avons cherché à mettre en place des partenariats, notamment au niveau européen. C'est ainsi que nous avons participé comme observateurs à deux intercomparaisons dans le cadre du programme EURSAAR, et que nous contribuons aux travaux de normalisation CEN sur le mesurage du nombre et de la taille en air ambiant.

Instrumentation

Tableau 2 : bilan du point de vue instrumental

Objectif	Actions menées	Résultats	Perspectives
<p>Etre capable de caractériser la distribution en taille des particules submicroniques sur des campagnes de 5 semaines</p> <p>Evaluer des matériels de même type ou de conception différente ; rechercher des solutions simples en termes d'intégration (pbl. Des sources radioactives, du butanol)</p> <p>Avoir une réflexion sur des paramètres alternatifs : cas de la surface spécifique</p>	<p>Mise en œuvre de campagnes de mesure</p> <p>✓ Test du SMPS Grimm</p> <p>✓ Test de l'ELPI</p> <p>✓ Test du 3031</p> <p>Mise en œuvre du NSAM puis de l'AeroTrak 9000</p>	<p>✓ Validation des systèmes SMPS et APS (TSI), systèmes de laboratoire, sur la base d'environ 10 campagnes de mesurage</p> <p>✓ Limites atteintes sur le SMPS courant 2008</p> <p>Le SMPS TSI reste à ce jour la référence, malgré une défaillance importante sur 2008 / 2009.</p> <p>Le 3031 est la première proposition sérieuse hors SMPS.</p> <p>Reste par ailleurs une approche (peu documentée à ce jour) consistant à ne mesurer que la concentration en nombre, via à un compteur (butanol).</p> <p>Retour d'expérience sur cette approche :</p> <p>✓ Bonne intégration sur le terrain (pas de butanol, de source radioactive)</p> <p>✓ Abordable (15 k€)</p> <p>✓ Très bonne corrélation avec le nombre</p> <p>✓ Visibilité insuffisante en termes de test et étalonnage, pour cette technique</p> <p>✓ Des améliorations importantes à apporter pour aller de l'intervention courte au monitoring</p>	<p>✓ Le matériel doit être adapté ou reconsidéré pour faire du monitoring permanent (cf. action UFIPOINNET)</p> <p>✓ SMPS : une nouvelle génération de compteurs de particules utilise de l'eau, non plus du butanol</p> <p>✓ monitoring par SMPS : des constructeurs autres que TSI se positionnent (Grimm, MSP, etc.)</p> <p>✓ granulomètre UFIPOINNET (3031) : a été intégré dans le programme de travail</p> <p>✓ Susciter des améliorations pratiques pour le monitoring (changement de pompe, convivialité)</p> <p>✓ Mesure indirecte : quelle représentativité ?</p> <p>➔ à ce stade, cette technologie est jugée insuffisante pour envisager des perspectives</p>

Objectif	Actions menées	Résultats	Perspectives
<p>Rechercher une instrumentation orientée « surveillance »</p>	<p>Le projet européen UFIPOLNET a eu pour objectif de concevoir un appareil spécifique.</p> <p>Produit par TOPAS, il est commercialisé par TSI depuis 2009.</p> <p>Nous l'avons mis en test à partir de 2009.</p>	<ul style="list-style-type: none"> ✓ Les travaux préliminaires ont montré une bonne cohérence avec le SMPS sur le nombre total ✓ par contre, besoin d'évaluation approfondie sur la mesure de la taille, et manque de culture « surveillance » chez le concepteur TOPAS et le vendeur TSI ✓ Le retour d'expérience français a entraîné une modification de l'appareil courant 2011. 	<ul style="list-style-type: none"> ✓ 2011 : l'ASN durcit ses exigences concernant les sources radioactives, ce qui complique l'utilisation de SMPS et renforce la nécessité d'avoir des alternatives. ✓ Nouvelle version du 3031 attendue début 2012 ✓ mise en œuvre dans le cadre de projets régionaux ✓ nécessité d'avoir une meilleure idée de l'avenir de cet appareil en matière de normalisation ; sera-t-il reconnu par les normes CEN en cours d'élaboration ?
<p>Amélioration continue, normalisation</p>	<ul style="list-style-type: none"> ✓ Développement de procédures, d'un banc d'étalonnage en nombre et taille ✓ Adhésion au réseau EUSAAR (intercomparaisons, échanges) ✓ Adhésion au nouveau groupe CEN (2009) 	<ul style="list-style-type: none"> ✓ Tests sur banc avant et après chaque campagne ✓ Participation à un exercice interlaboratoire en juin 2009 et septembre 2011; 	<p>Si l'étalonnage en taille semble assez mature, du travail reste à mener pour l'étalonnage en nombre : la technique de référence (cage de Faraday) est très sensible aux propriétés électriques du générateur de particules utilisé sur le banc (problématique des charges multiples).</p> <p>La normalisation est à ses prémices : il sera important de veiller à ce que les contraintes métrologiques n'entraînent pas de concession au niveau de la détermination de l'exposition. A titre d'exemple, sécher l'aérosol avant la mesure facilite le mesurage, mais pose potentiellement un problème de représentativité du mesurage : le séchage est susceptible de réduire le diamètre des particules et de ce fait d'altérer la caractérisation de l'exposition.</p>

2.2 BILAN DES TRAVAUX SUR LE GRANULOMETRE 3031

2.2.1 INTERET

Le granulomètre 3031 a été développé au sein du programme européen UFIPOLNET. Cet appareil a été conçu spécialement pour une activité de surveillance. Il présente par conséquent –sur le papier- des avantages par rapport au SMPS, qui est avant tout un appareil de laboratoire :

- Absence de source radioactive : utilisation plus aisée d'un point de vue réglementaire et administratif ;
- Absence de butanol : allègement en termes de consommables et de gestion des rejets.

Il convient par contre d'évaluer les performances de cet appareil : les propriétés attendues sont-elles effectives ? L'appareil aurait-il par ailleurs des limitations ? On pense par exemple à l'utilisation d'un électromètre comme détecteur, technique jusqu'ici moins sensible qu'un compteur de noyaux de condensation.

A l'issue du projet UFIPOLNET, cet appareil est devenu disponible sur le marché, fin 2008. Fabriqué par la société Topas, il est commercialisé par la société TSI.

Du fait des avantages présentés ci-dessus, un effort particulier a été mené pour évaluer le potentiel de cet appareil. Un des premiers objectifs a été de le comparer avec le granulomètre SMPS utilisé au sein de ce programme depuis 2003.

2.2.2 COMPARAISON AVEC LE SMPS

Résultats 2009 - 2010

Deux campagnes de comparaison ont été effectuées, la première au cours de l'été 2009, la seconde au cours de l'hiver 2010.

Des régressions linéaires ont été établies par moindres carrés ordinaires, pour deux gammes de taille simplifiées (cf. Tableau 3), avec les concentrations mesurées par le SMPS comme variables de référence.

Tableau 3 – Comparaison 3031/SMPS. Variables comparées d'un point de vue métrologique.

3031		SMPS	
N1_3031 [p/cm ³]	20-100 nm	N1_SMPS	10-100 nm
		N1bis_SMPS [p/cm ³]	20-100 nm
N2_3031 [p/cm ³]	100-800 nm	N2_SMPS [p/cm ³]	100-500 nm

En ce qui concerne les données de l'été 2009, la régression par moindres carrés montre une vraie similarité, avec notamment un coefficient de corrélation excellent ($> 0,95$), mais aussi des différences, avec par exemple une pente d'environ 1,15 à 1,30 dans la gamme 20 – 100 nm.

L'exploitation des données de l'hiver 2010 révèle un bon accord entre les deux types de mesure lorsque la comparaison porte sur les gammes communes de diamètres. Elle indique une sous-estimation de l'ordre de 20-25% lorsque la variable N1_3031 (20-100 nm) est comparée à N1_SMPS (10-100 nm).

Il est difficile à ce stade de conclure sur les performances du 3031 relativement au SMPS. Comme le 3031 faisait encore l'objet d'optimisations jusqu'en 2011, il a été jugé préférable de ne pas pousser plus loin l'analyse et d'approfondir cette question à partir de 2012.

2.2.3 PREMIERES CONCLUSIONS SUR LE 3031

Les travaux du LCSQA permettent d'illustrer les limites opérationnelles des SMPS dans le cadre d'une utilisation en réseau (complexité de la mise en œuvre, notamment en matière de radioprotection, densité des bases de données générées), et l'intérêt potentiel du 3031 pour ce type d'approche (cf. Tableau 1).

Pour ce dernier, si son cahier des charges répond très bien aux contraintes opérationnelles du mesurage en continu par des AASQA, beaucoup reste à faire en matière de démonstration de ses performances. Les premiers résultats obtenus sur le site de Gennevilliers permettent d'ores et déjà d'en apprécier les limites en termes d'outil de compréhension des processus atmosphériques. En particulier, la largeur des plages de taille caractérisées (seulement 6 canaux) ainsi que le manque d'informations sur les particules inférieures à 20 nm ne permettent pas une étude optimum des phénomènes de nucléation et de grossissement des particules. Néanmoins, les bonnes corrélations observées entre mesures SPMS et 3031 au cours des campagnes de 2009 et 2010 de Gennevilliers sont encourageantes du point de vue de la qualité du comptage des particules ultrafines directement émises par les activités humaines. Les actions engagées avec quelques AASQA depuis mi-2011 fourniront par ailleurs de précieuses informations sur la stabilité dans le temps des mesures par 3031.

3. INTERPRETATION DES CAMPAGNES DE GENNEVILLIERS

Le chapitre 3 a pour objectif de faire la synthèse des résultats obtenus sur le site de Gennevilliers en matière d'observation dans le temps des particules submicroniques.

Sont présentés le type de matériel et les campagnes de mesure (3.1), les résultats hivernaux (3.2) et estivaux (3.3), ceci avant d'établir un bilan par rapport aux objectifs initiaux, et d'évoquer les perspectives (1.1).

Le Tableau 4 résume les résultats obtenus sur le site de Gennevilliers. Tout au long de ce chapitre, les principaux points seront détaillés et commentés au vu de références bibliographiques, et notamment de la synthèse bibliographique effectuée par Morawska et coll. [Morawska 2008] qui est basée sur plus de 190 références.

Tableau 4 : synthèse des résultats – comparaison avec les résultats de la bibliographie

Résultats Gennevilliers	Publications traitant de problématiques similaires
Choix du matériel	Morawska 2008
Ordre de grandeur des concentrations en nombre observées sur le site	Morawska 2008
Existence d'un cycle journalier	Martin 2009 Ruuskanen 2001 (surtout pour les ultrafines)
Impact prédominant de l'heure de pointe le matin	Martin 2009 ; Moore 2007 ; Ruuskanen 2001 (ultrafines)
Augmentation de la dilution l'AM	Martin 2009 (vent) ; Moore 2007 (vent) ; Zhao 2008 (vent et hauteur de couche limite)
Augmentation de la dispersion l'AM	Martin 2009 (flux de chaleur sensible)
Différences jours ouvrés/week-end	Martin 2009 Ruuskanen 2001 (surtout pour les ultrafines)
Distribution en taille en nombre : domination des PUF	Morawska 2008
Trafic : principale source urbaine	Morawska 2008 ; Sioutas 2005
Photochimie l'AM (été)	Moore 2007 ; Ketznel 2003
Le pic de PUF anticipe le pic d'ozone	Moore 2007, Sioutas 2005

3.1 MATERIELS ET CAMPAGNES DE MESURE

Le tableau

Tableau 5 récapitule l'ensemble des campagnes de mesure réalisées sur le site de Gennevilliers depuis 2003.

De 2003 à 2009, les campagnes ont duré environ 5 semaines, et ont été réalisées à l'aide du granulomètre SMPS (société TSI). Il est à noter que ce choix (analyseur de mobilité électrique + compteur de particules) est en cohérence avec la majorité des études publiées [Morawska 2008] ; le choix du fabricant va également dans ce sens : la plupart des acteurs (hors prototypes) utilisent du matériel fabriqué par la société TSI, alors qu'un nombre réduit utilisent des appareils de la société Grimm [Morawska 2008].

Le granulomètre 3031 a été introduit en 2009, en parallèle au SMPS. Il a permis d'allonger progressivement les campagnes (ex. été 2010) pour envisager, à compter de janvier 2010, la réalisation de longues séries temporelles.

Tableau 5 : Liste des campagnes de mesure réalisées depuis 2003 à Gennevilliers

Base	Date de début (HL : heure locale)	Date de fin	Instrumentation
Gennevilliers 2003 Hiver	21/02/2003 16h00 HL	04/04/2003 10h00 HL	SMPS
Gennevilliers 2004 Hiver	02/03/2004 15h00 HL	05/04/2004 11h00 HL	SMPS + APS
Gennevilliers 2005 Hiver	11/03/2005 11h00 HL	25/04/2005 13h00 HL	SMPS + APS
Gennevilliers 2005 Été	18/07/2005 10h00 HL	10/08/2005 11h00 HL	SMPS + APS
Gennevilliers 2006 Hiver	10/02/2006 13h00 HL	17/03/2006 09h00 HL	SMPS + APS
Gennevilliers 2007 Hiver	07/02/2007 14h00 HL	20/03/2007 00h00 HL	SMPS + APS
Gennevilliers 2008 Hiver ^a	22/02/2008 17h00 HL	19/03/2008 12h00 HL	SMPS + APS
Gennevilliers 2009 Hiver	20/02/2009 15h00 HL	29/03/2009 02h00 HL	3031 + APS
Gennevilliers 2009 Été	31/07/2009 16h00 HL	18/09/2009 10h00 HL	SMPS + 3031 + APS
Gennevilliers 2010 Hiver	11/02/2010 15h00 HL	30/03/2010 12h00 HL	SMPS + 3031 + APS
Gennevilliers 2010 Été	06/07/2010 13h00 HL	22/09/2010 10h00 HL	3031
Gennevilliers 2011	31/01/2011 15h00 HL	18/08/2011 14h00 HL	3031

^a : données invalidées (défectuosité dans la communication DMA / CNC, entraînant un risque sur la validité des données collectées).

En complément, les données de différentes variables potentiellement corrélées aux concentrations en nombre et susceptibles d'en expliquer les variations ont été considérées :

- concentrations massiques de NO, NO₂, O₃, PM₁₀, PM_{2.5} mesurées sur le site de Gennevilliers (source : AIRPARIF) ;
- émissions locales de polluants. En particulier sont considérées les émissions de particules issues du trafic dans un rayon de 500 m autour du site de Gennevilliers (source : AIRPARIF). Elles ont été calculées à partir de données fines de comptage automobile. Les émissions du chauffage sont décrites par un profil temporel théorique établi par AIRPARIF.
- Paramètres météorologiques divers (vent, température, nébulosité,...) mesurés sur la station du Bourget (source : Météo-France) ;
- hauteur de couche limite atmosphérique simulée par le modèle MM5 (source : INERIS).

Un tableau rassemblant ces différents types de données (format .xls et .csv) a été créé pour chacune des campagnes évoquées précédemment. Les traitements statistiques et graphiques ont été réalisés à l'aide du logiciel libre R (logiciel de programmation accessible à l'adresse <http://cran.r-project.org>).

3.2 CAMPAGNES HIVERNALES

Les résultats présentés dans ce paragraphe portent sur les données produites par SMPS entre 2003 et 2010.

3.2.1 CONCENTRATION EN NOMBRE

La concentration en nombre moyenne relevée à Gennevilliers lors de nos campagnes hivernales se situe dans la gamme 10 000 – 15 000 p/cm³. (Figure 1)

La synthèse bibliographique réalisée par Morawska montre le rôle essentiel joué par la typologie des sites sur la concentration totale en nombre (Figure 2, [Morawska 2008]) : les niveaux en site de proximité trafic dominant par rapport au fond urbain lequel se situe au dessus des concentrations en sites ruraux. Le confinement en présence de sources (tunnel) correspond aux niveaux les plus élevés.

Ces données placent la concentration moyenne à 7 290 p/cc pour les sites de « fond urbain », et à 10 760 pour les sites « urbains » ; les observations hivernales à Gennevilliers se rapprochent plutôt du second cas. Il est à noter que cette dernière typologie et la manière dont elle se distingue du fond urbain et de la proximité automobile ne sont pas clairement définies par l'auteur.

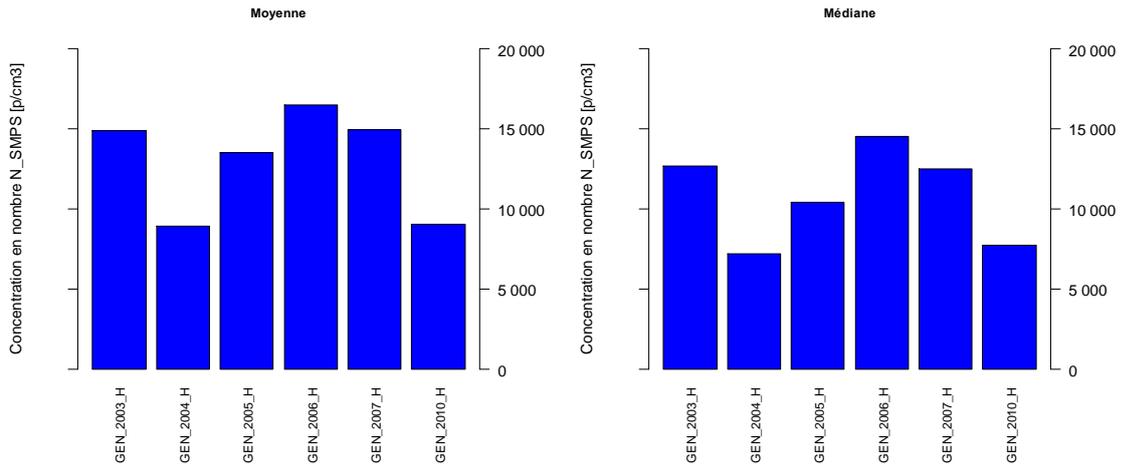


Figure 1 - Concentration en nombre [p/cm³] (moyenne, figure de gauche, et médiane, figure de droite) mesurée par SMPS lors des campagnes hivernales (années 2003-2007 et 2010)

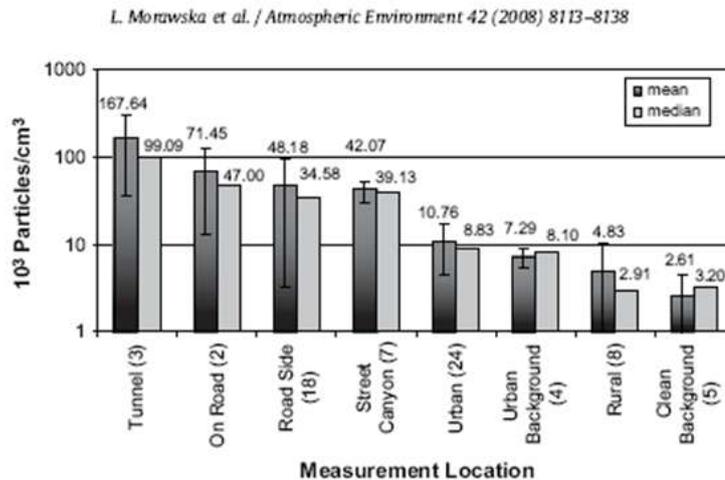


Fig. 2. Mean and median particle number concentrations for different environments. In brackets are the numbers of sites for each environment.

Figure 2 - Synthèse des résultats de la bibliographie concernant la concentration en nombre (moyenne et médiane)

3.2.2 DISTRIBUTION EN TAILLE

Nos résultats sont conformes à l'état de l'art ([Morawska 2008]), à savoir que la concentration en nombre est systématiquement dominée par les particules ultrafines (Figure 3), à hauteur de 80 à 87 % (

Tableau 6).

Tableau 6 - Contribution de différentes classes de taille à la concentration en nombre totale. Statistiques sur les mesures effectuées par SMPS lors des campagnes hivernales (années 2003-2007 et 2010)

Gamme :		N1 : 10 – 100 nm	N2 : 100 – 500 nm	N3 : 0,5 – 20 µm
Contribution à la concentration totale :	Min-max	50% - 96%	4% – 48%	0,01 % - 5,7%
	Moy	82%	18%	0,2%

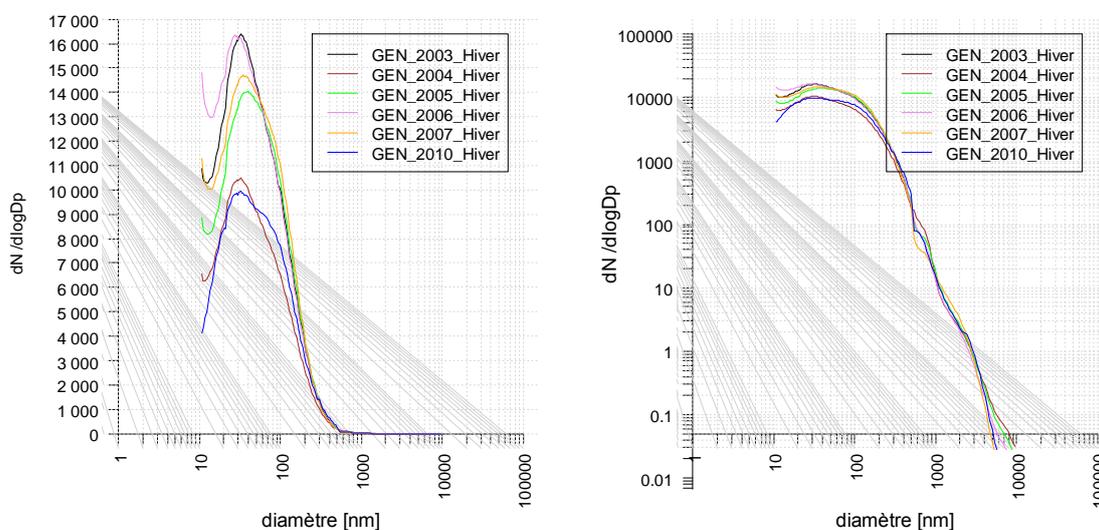


Figure 3 – Distribution granulométrique moyenne par campagne dans la gamme 10 nm – 10 µm. SMPS, Gennevilliers, 2003 – 2010. Profil calculé sur les jours ouvrés. Figure de droite : échelle logarithmique en ordonnée.

3.2.3 CYCLE JOURNALIER

Nous avons montré, dès 2003, que la concentration en nombre présentait un cycle journalier au niveau de la station de Gennevilliers [Godard 2003 ; Le Bihan 2004].

Année après année, ce cycle s'est révélé stable dans le temps. Il se caractérise par un niveau de fond nocturne et un profil diurne bimodal (pic le matin et le soir) marqué.

Une étude préliminaire fondée sur l'exploitation de quelques points de comptage du trafic a montré en 2004 [Le Bihan 2004] l'influence majeure de cette source sur le cycle journalier des particules submicroniques sur le site de Gennevilliers. Il a également mis en évidence la difficulté de représenter correctement cette source par un paramètre simple.

L'approche statistique menée à partir de 2007 et le développement de l'inventaire d'émissions d'AIRPARIF ont permis d'élaborer un schéma de compréhension, traité en détail dans le rapport 2008 [Le Bihan et Malherbe, 2008].

Ce schéma est présenté ci-dessous (Figure 4).

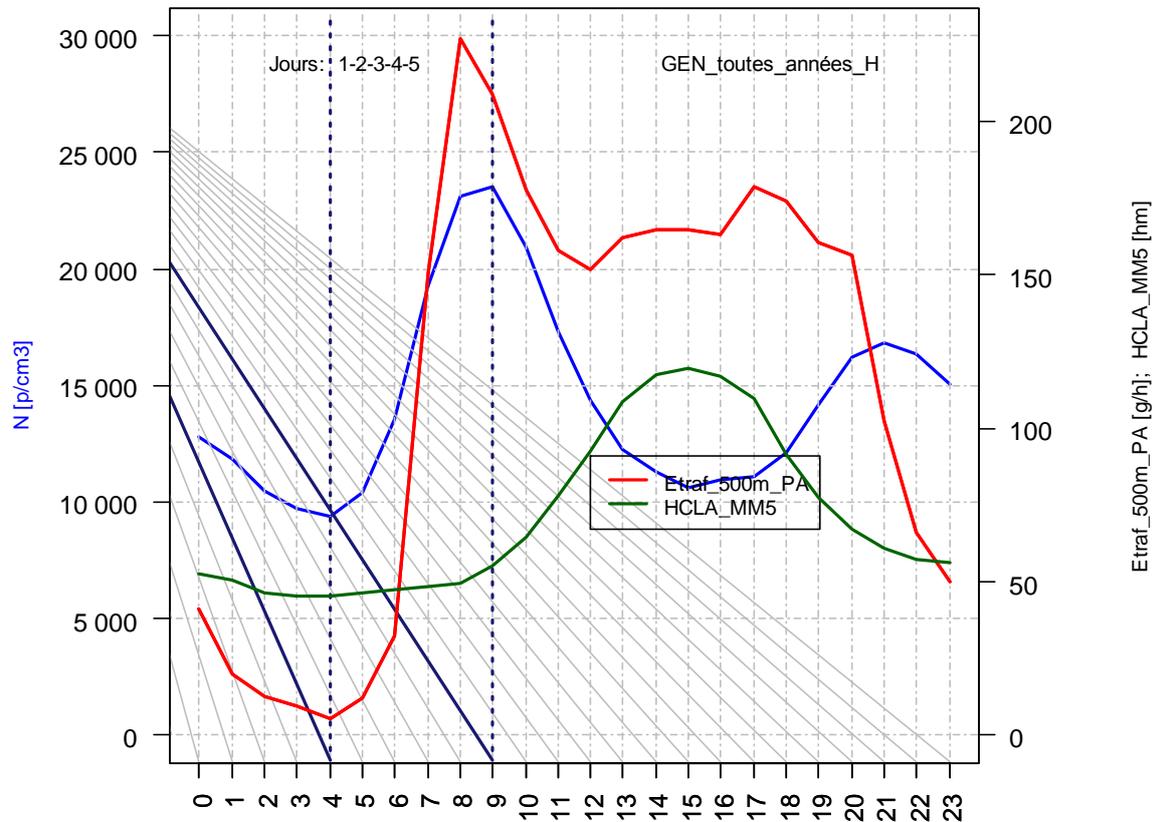


Figure 4 - Schéma de compréhension. Moyenne sur les campagnes hivernales (jours ouvrés) 2003 à 2007. En bleu : concentration en nombre dans la gamme 10-500 nm ; en rouge : émissions du trafic dans un rayon de 500 m autour de la station ; en vert : hauteur de la couche limite atmosphérique simulée par le modèle MM5.

Ce schéma s'appuie sur les deux paramètres nous semblant influencer le plus le cycle journalier des concentrations en nombre de particules ultrafines sur le site d'étude : le trafic automobile et la hauteur de la couche de mélange (calculée par le modèle météorologique MM5).

L'interprétation de ce cycle est la suivante : les principales sources anthropiques (chauffage et surtout trafic automobile) sont plus intenses en journée, le pic le plus important correspondant aux heures de pointe matinales. Ce cycle journalier des émissions (avec un second pic le soir) est contrebalancé par les variations de la hauteur de couche limite (minimale la nuit, maximale en milieu de journée) conditionnant le volume de mélange, ainsi que par les vitesses de vent. .

3.2.4 DISCUSSION AU VU DE LA BIBLIOGRAPHIE

Ce travail présenté ci-dessus constitue une originalité de l'approche menée à Gennevilliers, d'une part du fait du volume de données (même s'il reste modeste) et de la plage temporelle considérée (campagnes reconduites chaque année depuis 2003), et d'autre part du fait de l'ajout de paramètres complémentaires (émissions, météorologie).

En effet, l'existence d'un cycle journalier n'est pas systématiquement abordée dans les études publiées. Dans de nombreux cas (par exemple Moore 2007), la base de données est réduite (campagne de quelques jours), ce qui fragilise l'approche. Comme pour notre étude, la dilution sous l'action du vent [Martin 2009, Moore, 2007] et de la hauteur de la couche limite [Zhao 2009] est mise en avant pour expliquer la chute des concentrations en milieu de journée. Dans de nombreux cas, un minimum de concentration est observé la nuit [Martin 2009].

Le pic du matin est relevé par la plupart des auteurs, et associé au trafic et plus largement aux activités humaines [Martin 2009, Moore 2007, Ruuskanen 2001]. En revanche, l'après-midi, le comportement est plus variable selon les sites et les saisons, les réactions photochimiques pouvant notamment conduire à la formation d'épisodes de nucléation (abordés ci-après).

3.3 VARIATIONS SAISONNIERES

3.3.1 DONNEES CONSIDEREES

Les résultats des campagnes estivales présentés ci-dessous sont basés sur les campagnes estivales de 2005, 2009, 2010 et 2011.

Au cours de l'été 2005, les concentrations de particules submicroniques ont été mesurées par SMPS (gamme 10-500 nm), durant 3 semaines.

Au cours de l'été 2009, les concentrations de particules submicroniques ont été mesurées simultanément par 3031 (gamme 20-800 nm) et par SMPS (gamme 10-500 nm), ceci dans le cadre de l'étude du granulomètre 3031 (cf. 2). Deux SMPS ont été utilisés successivement, sur des périodes respectivement désignées *E1* et *E2*.

Au cours de l'été 2010 et en 2011, les concentrations de particules submicroniques ont été mesurées par 3031 (gamme 20-800 nm).

3.3.2 STATISTIQUES ELEMENTAIRES

Statistiques des différentes campagnes estivales

La Figure 5 met en évidence la particularité de la campagne de 2005 : l'ensemble des indicateurs statistiques (moyenne, médiane, centiles) montre un niveau de concentration très élevé par rapport aux campagnes estivales qui ont suivi en 2009 et 2010. Par contre, les valeurs de concentration mesurées en 2009 et 2010 sont comparables entre-elles.

Les données produites en 2009 et 2010 ont permis d'augmenter considérablement le volume de données estivales.

La campagne de mesurage de 2005, réalisée sur une courte période (3 semaines) s'est révélée totalement atypique, avec des concentrations en nombre exceptionnellement élevées. La moyenne sur les deux autres campagnes s'aligne sur les observations effectuées par nos homologues européens [Morawska 2008] : les valeurs estivales sont en moyenne inférieures aux valeurs hivernales.

Comparaison été/hiver

Les valeurs estivales sont inférieures aux valeurs hivernales (Figure 6), ce qui est conforme à l'état de l'art dans l'hémisphère nord [Morawska 2008]. Le rapport entre les moyennes (ou médianes) estivale et hivernale d'une même année varie entre 0,64 et 0,87 selon la plage granulométrique et l'année (Tableau 7).

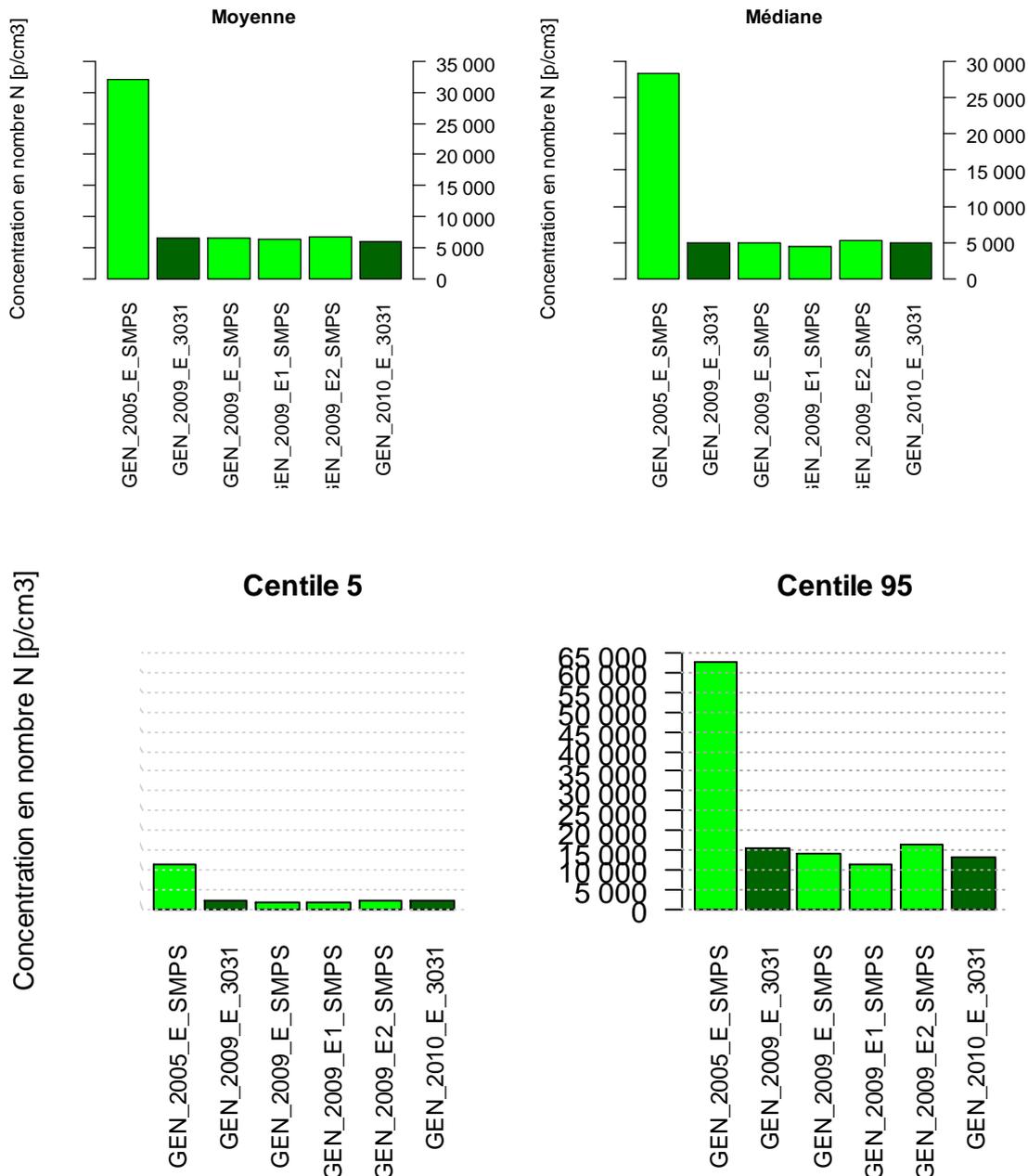
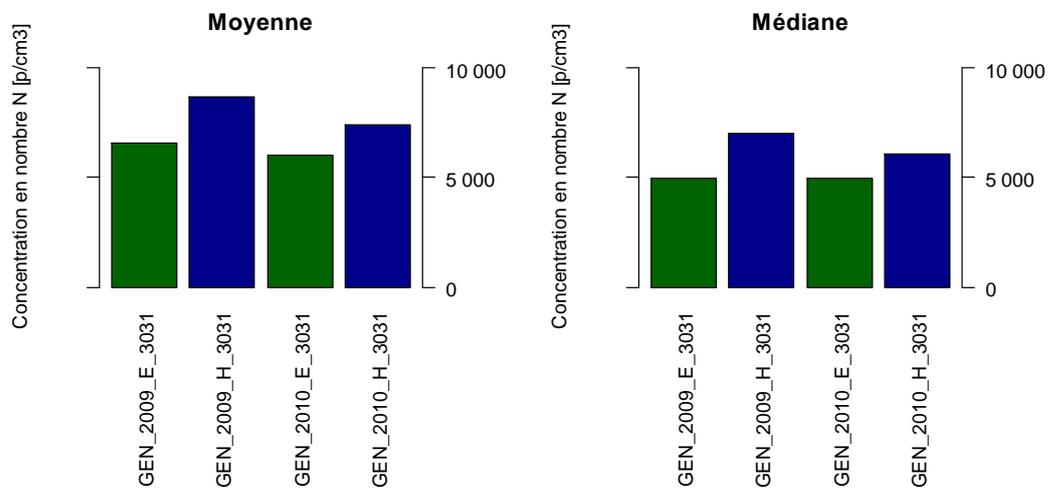


Figure 5 – Statistiques élémentaires de la concentration N (20-800 nm) mesurée par SMPS ou 3031 à Gennevilliers pendant les campagnes d'été (tous types de jours).

Tableau 7 – Rapport entre les statistiques estivales et hivernales des concentrations en nombre N1 (20-100 nm), N2 (100-800 nm) et N (20-800 nm)

	var	Rapport entre les centiles 5	Rapport entre les médianes	Rapport entre les centiles 95	Rapport entre les moyennes
2009	N1_3031	0.765	0.702	0.719	0.731
2010	N1_3031	1.078	0.899	0.729	0.865
2009	N2_3031	0.950	0.856	0.882	0.850
2010	N2_3031	1.076	0.640	0.638	0.678
2009	N_3031	0.858	0.711	0.784	0.753
2010	N_3031	1.114	0.819	0.701	0.817



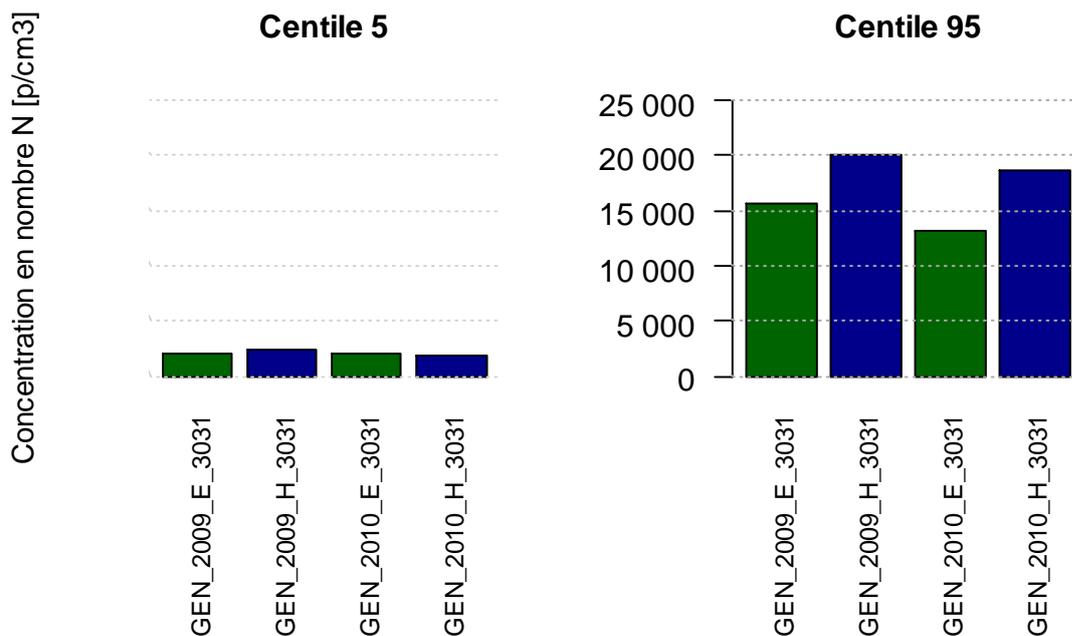


Figure 6 – Statistiques élémentaires de la concentration N (20-800 nm) mesurée par 3031 à Gennevilliers pendant les campagnes d'hiver (H) et d'été (E) 2009-2010 (tous types de jours).

La Figure 7 présente les premiers résultats obtenus sur le long-terme en 2011 par 3031. Ceux-ci s'accordent avec les résultats précédents : en été la concentration en nombre de particules varie dans une gamme de valeurs plus restreinte et atteint des niveaux significativement moins élevés qu'en hiver.

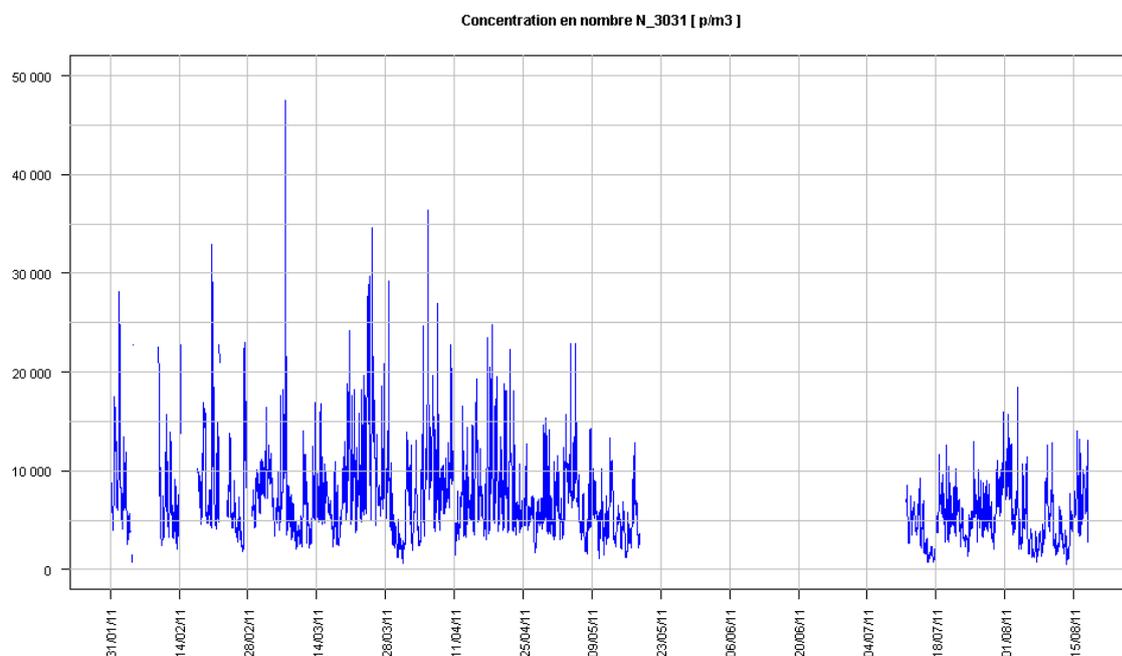


Figure 7 – Série temporelle de la concentration N (10-500 nm) mesurée par 3031 à Gennevilliers en 2011 (interruption des mesures de mai à juillet)

3.3.3 PHOTOCHEMIE

Des réactions photochimiques conduisent à la formation d'espèces de faible volatilité à température ambiante : ces composés peuvent produire des particules, via une grande variété de processus de nucléation [Sioutas 2005].

Le présent chapitre est consacré à ce phénomène.

Cette analyse est réalisée grâce à l'étude du cycle journalier de la concentration totale en nombre, puis de celui de la distribution en taille.

Cycle journalier. Comparaison avec le cycle de l'ozone.

Sur un même graphique (Figure 8, Figure 9) sont représentés le cycle journalier des concentrations de particules dans la gamme des plus petits diamètres (diamètre ≤ 30 nm) et le cycle journalier des gaz (NO, NO₂ et ozone), observés en 2009 et 2010.

Le pic matinal de la concentration en nombre concorde généralement avec celui des NO_x. Cette similitude de comportement est également observée en hiver pour la concentration en nombre totale ; elle est en grande partie attribuée au trafic automobile.

On relève une augmentation des concentrations en début d'après-midi (entre 13h et 15h environ en 2009, entre 15h et 16h en 2010 d'après le 3031), en phase ou en légère avance par rapport à celle de l'ozone. Cette dynamique concomitante de l'ozone indique qu'un phénomène photochimique est possible, comme cela a été observé par ailleurs [Ketznel 2003, Moore 2007]. Cette hypothèse sera discutée dans le paragraphe suivant en prenant en compte la distribution en taille.

Il est possible de considérer ce phénomène pour deux classes de taille, N1 et N2 correspondant respectivement à la gamme 10-100nm et 10-500 nm (cf. *Tableau 6*).

Cette augmentation se répercute sur le cycle de N1 (cf. Figure 10). En revanche, le cycle de N2 ne montre pas de pic marqué l'après-midi ; il reste en bon accord avec celui des NO_x (Figure 10).

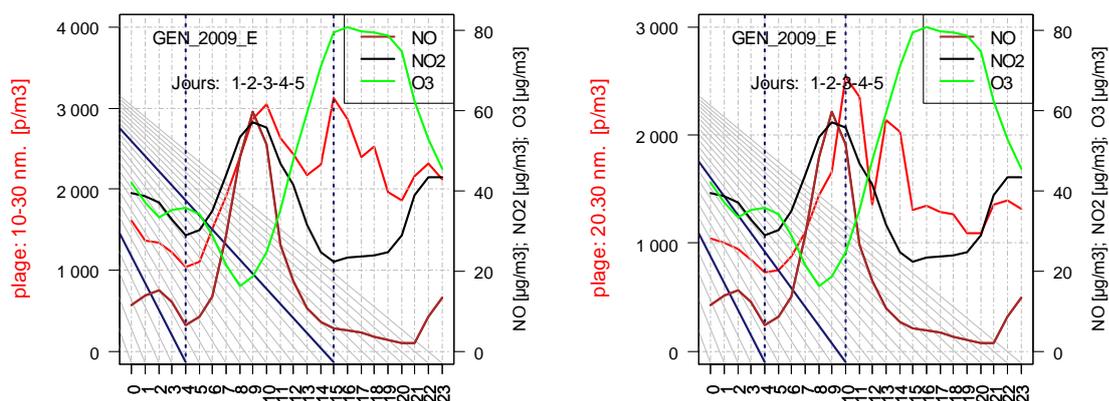


Figure 8 – Gennevilliers. Eté 2009. Jours ouvrés. Cycle journalier de la concentration en nombre moyenne mesurée par **SMPS** dans la **gamme 10-30 nm (gauche)** et par **3031** dans la **gamme 20-30 nm (droite)**, ainsi que des concentrations massiques de NO, NO₂ et ozone. Une valeur à l'instant *h* représente l'heure comprise entre *h-1* et *h*.

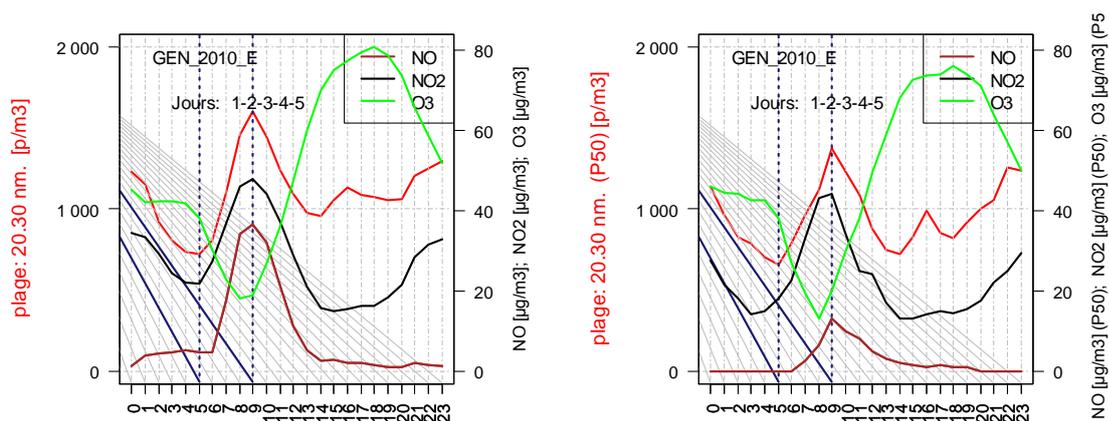


Figure 9 – Gennevilliers. Eté 2010. Jours ouvrés. Cycle journalier de la concentration en nombre mesurée par **3031** dans la **gamme 20-30 nm**, ainsi que des concentrations massiques de NO, NO₂ et ozone. Une valeur à l'instant *h* représente l'heure comprise entre *h-1* et *h*. Figure de gauche : cycle moyen ; figure de droite : cycle médian.

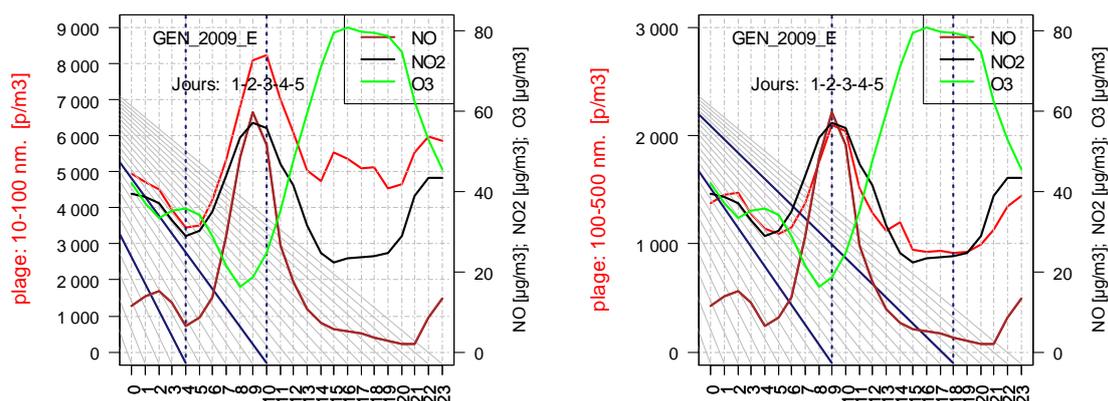


Figure 10 – Gennevilliers. **Eté 2009.** Jours ouvrés. Cycle journalier de la concentration en nombre moyenne mesurée par **SMPS** dans la **gamme 10-100 nm (variable N1, figure de gauche)** et **100-500 nm (variable N2, figure de droite)**, ainsi que des concentrations massiques de **NO**, **NO₂** et **ozone**. Une valeur à l'instant *h* représente l'heure comprise entre *h-1* et *h*.

Evolution journalière de la composition granulométrique

Les figures suivantes représentent, en moyenne sur les jours ouvrés d'une campagne, l'évolution journalière des concentrations numériques de particules dans chaque fraction granulométrique de la gamme 10-500 nm (SMPS) ou 20-800 nm (3031).

Les valeurs en abscisse indiquent les heures de la journée.

Les valeurs en ordonnée correspondent :

- dans le cas du SMPS, au diamètre central des canaux granulométriques (64 canaux au total) ;
- dans le cas du 3031, aux limites de chaque canal granulométrique (6 canaux au total).

Les couleurs représentent la concentration de particules. Celle-ci est exprimée en nombre (p/cm^3) ou en pourcent (relativement à la concentration totale *N*).

On observe clairement l'apparition de particules dans la gamme des plus petits diamètres (10-40 nm pour le SMPS, pic vers 20 nm), ceci vers 15h (Figure 11). L'examen des distributions granulométriques moyennes le confirme : entre le matin et l'après-midi, le mode se déplace vers la gauche (Figure 13). Ces particules grossissent ensuite progressivement. Ces caractéristiques sont typiques d'un phénomène de nucléation ; l'observation en parallèle d'un pic d'ozone en période estivale suggère donc très clairement l'existence d'un phénomène photochimique de création de nouvelles particules.

La Figure 12 (concentrations en %), qui représente l'évolution de la composition granulométrique au cours du temps, fait le mieux ressortir ce phénomène.

Le 3031 ne permet pas une appréciation aussi détaillée de l'évolution journalière de la granulométrie (Figure 16, Figure 17). Néanmoins, la nucléation est mise en évidence.

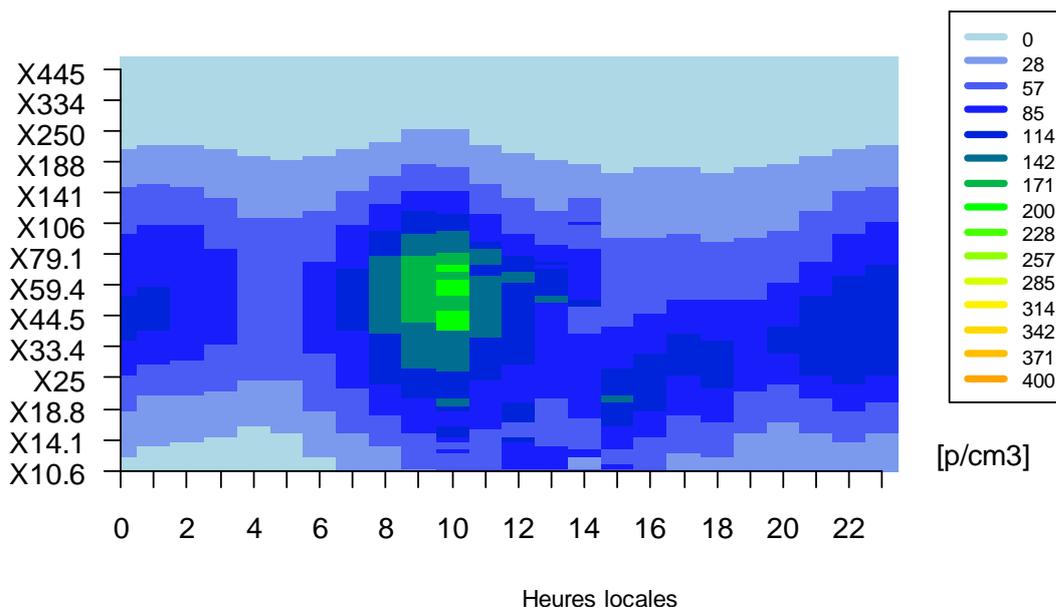


Figure 11 – Gennevilliers. Eté 2009. SMPS. Evolution moyenne journalière du nombre de particules (p/cm^3) pour chaque canal compris entre 10 et 500 nm.

La Figure 11 doit se lire de la manière suivante: par exemple, à 1h du matin, en moyenne sur la campagne, la concentration numérique de particules de diamètre voisin de 44,5 nm est d'environ 114 p/cm^3 (bleu foncé) ; à 10h du matin elle est d'environ 200 p/cm^3 (vert clair). La concentration numérique des particules de plus grande taille (> 250 nm) reste faible tout au long du jour (bleu clair).

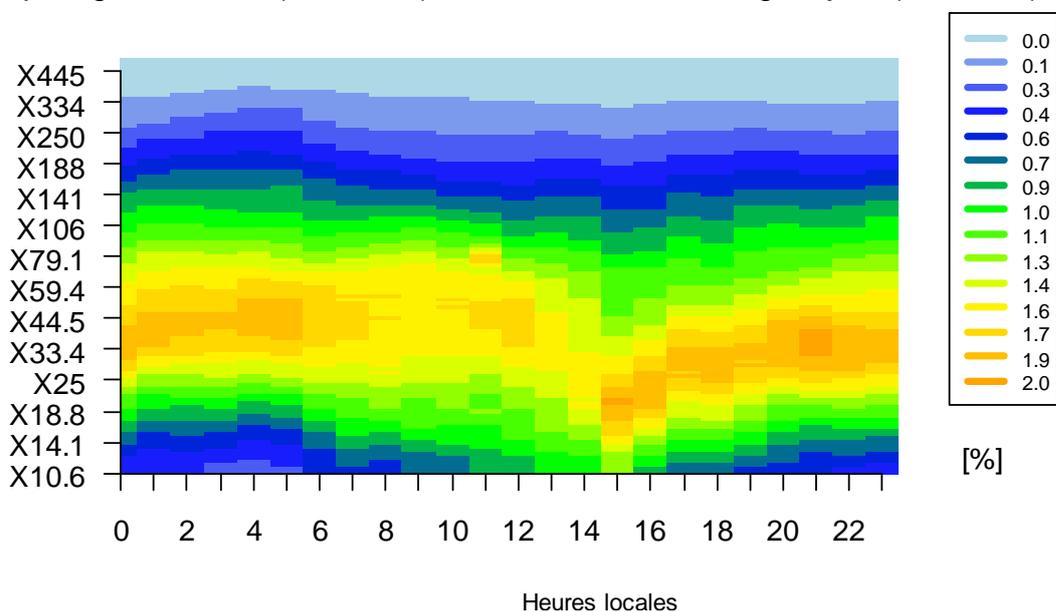


Figure 12 – Gennevilliers. Eté 2009. SMPS. Evolution moyenne journalière du nombre relatif de particules (%) pour chaque canal compris entre 10 et 500 nm.

La Figure 12 doit se lire de la manière suivante : par exemple, à 1h du matin, en moyenne sur la campagne, les particules de diamètre voisin de 44,5 nm représentent environ 1,7% du nombre total de particules (orangé) ; à 10h du matin, ce pourcentage est légèrement plus faible (1,6%, jaune). A 1h du matin, en moyenne sur la campagne, les particules de diamètre voisin de 18,8 nm représentent environ 1,0% du nombre total de particules (vert clair) ; à 15h, ce pourcentage est sensiblement supérieur (1,7%, orangé).

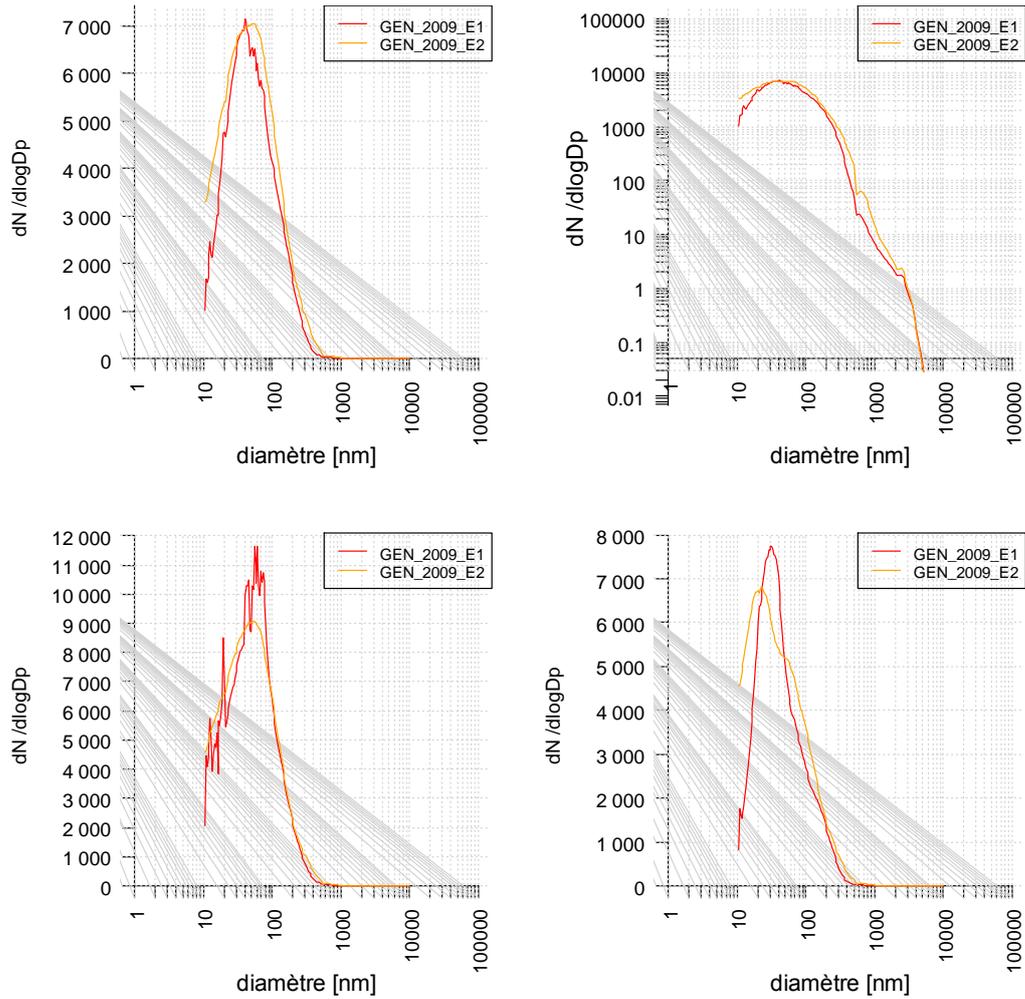


Figure 13 – Campagne de l’été 2009 : distribution granulométrique moyenne par période (E1 : orange, E2 : brun) dans la gamme 10 nm – 10 μm. Profil calculé sur les jours ouvrés. Ligne du haut : toutes heures confondues (sans ou avec échelle logarithmique en ordonnée); ligne du bas : tranches 8h-12h (fig. de gauche) et 14h-18h (fig. de droite). .

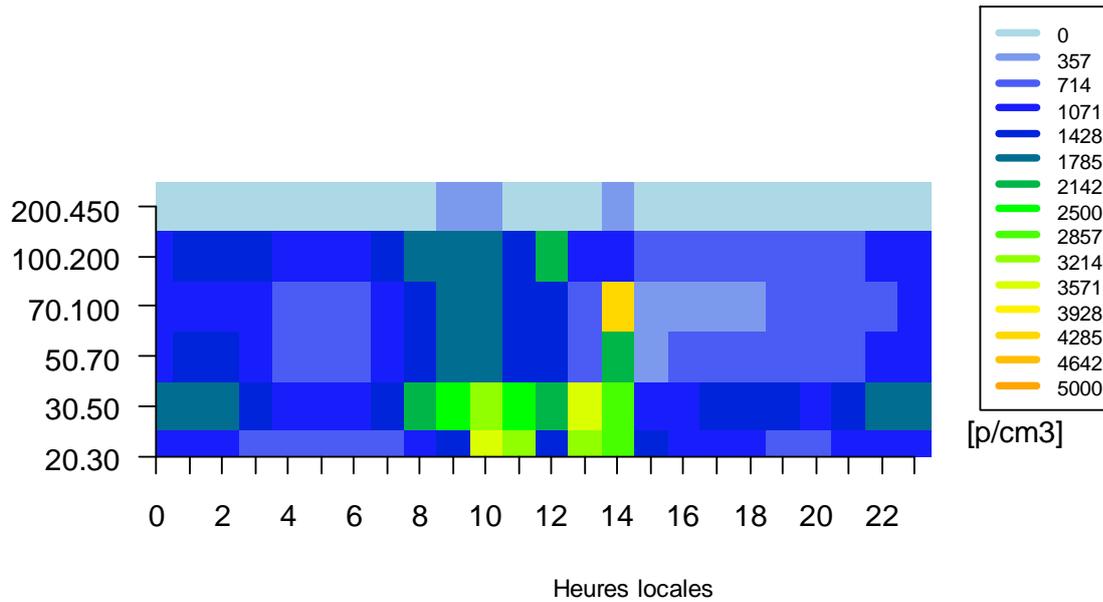


Figure 14 – Gennevilliers. Eté 2009. 3031. Evolution moyenne journalière du nombre de particules (p/cm^3) pour chaque canal compris entre 20 nm et 800 nm.

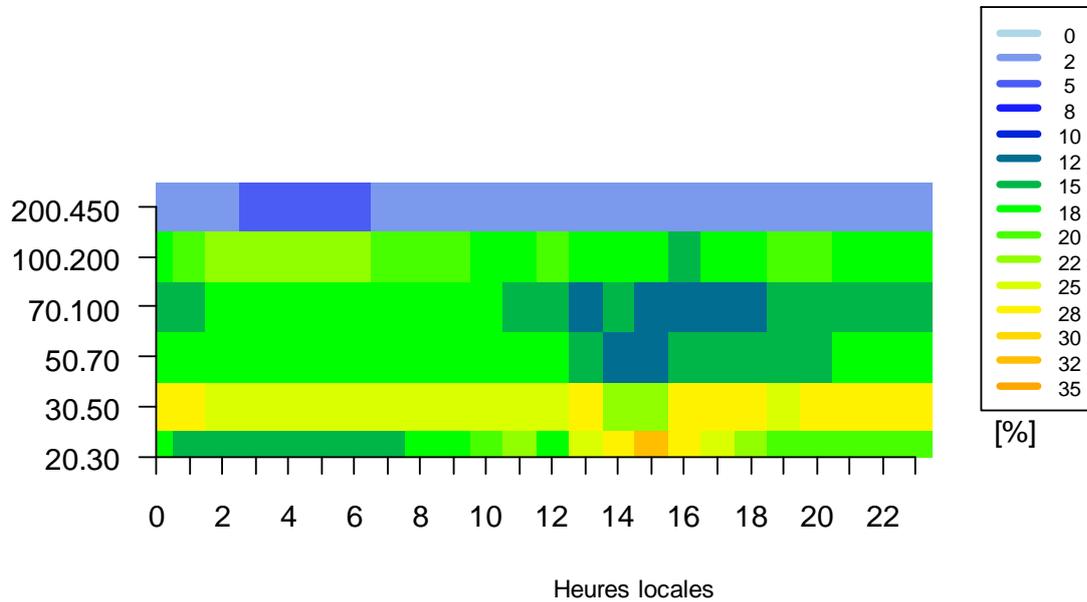


Figure 15 – Gennevilliers. Eté 2009. 3031. Evolution moyenne journalière du nombre relatif de particules (%) pour chaque canal compris entre 20 nm et 800 nm.

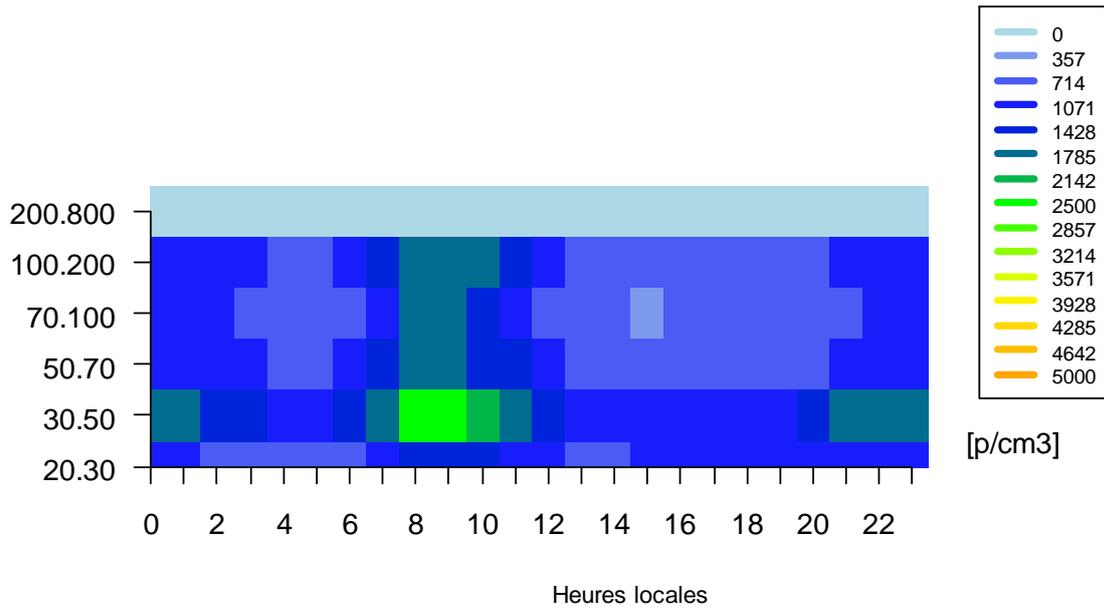


Figure 16 – Gennevilliers. Eté 2010. 3031. Evolution moyenne journalière du nombre de particules (p/cm^3) pour chaque canal compris entre 20 nm et 800 nm.

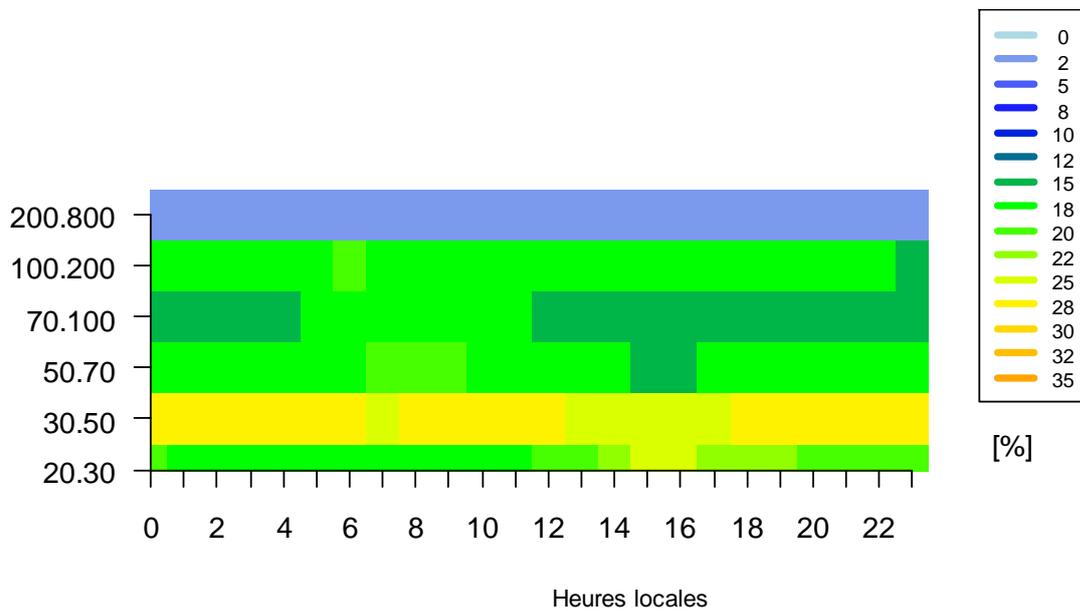


Figure 17 – Gennevilliers. Eté 2010. 3031. Evolution moyenne journalière du nombre relatif de particules (%) pour chaque canal compris entre 20 nm et 800 nm.

3.4 BILAN

Les objectifs initiaux de cette étude en partenariat avec AIRPARIF ont été :

- de développer une compétence en matière de mesurage des particules submicroniques,
- de rassembler les données issues des campagnes de mesurage,
- de documenter les caractéristiques des particules submicroniques dans le temps (cf. présent rapport), et si possible dans l'espace,
- d'exploiter ces données, si nécessaire en développant des outils de traitement, et en l'enrichissant avec des données complémentaires ; tout ceci pour développer la compréhension.

Le Tableau 8 propose un bilan de ce travail au regard des objectifs initiaux, dans l'ensemble atteints :

- ✓ chaque année, une campagne de mesure hivernale a été réalisée, permettant de développer une compétence en matière de mesurage des particules submicroniques et de documenter les caractéristiques des particules submicroniques lors d'une saison propice à l'accumulation des polluants ;
- ✓ l'effort a porté tout d'abord sur l'aérosol hivernal, pour intégrer ensuite l'aérosol estival, permettant une étude de saisonnalité ;
- ✓ l'exploitation de ces données en relation avec des variables d'émissions et de météorologie a permis d'élaborer un schéma de compréhension des variations journalières observées sur le site. ;

Le fait d'avoir conduit chaque année une, voire deux campagnes de mesure représente l'une des forces de cette étude : une telle approche, sans atteindre la représentativité d'un mesurage permanent, permet toutefois de s'affranchir des particularités météorologiques, de garantir la solidité des résultats et des interprétations issus des traitements statistiques.

Quelques pistes pourraient être encore explorées afin de préciser ces interprétations. En particulier, notre approche est basée sur la prise en compte des émissions du trafic dans un rayon de 500 m autour de la station de mesure. De ce fait, seule l'influence des rues voisines est considérée. Une étude de sensibilité au rayon pourrait être réalisée afin d'évaluer l'influence d'axes plus lointains.

Il serait également intéressant de pouvoir exploiter des inventaires d'émissions (chauffage et trafic) détaillés par classes de taille et espèces chimiques dans la zone d'étude, afin d'affiner la compréhension du lien entre émissions anthropiques et concentrations de particules ultrafines dans l'air ambiant. Dans cette optique, une approche complémentaire pourrait consister au couplage de mesures de nombre avec celle de teneur en carbone suie (ou « Black Carbon ») récemment décrit comme un traceur univoque des activités anthropiques et de leurs impacts sanitaires (Reche et al. 2011 ; Janssen et al. 2011).

Par ailleurs, le phénomène de nucléation pressenti lors de la campagne 2005, se trouve confirmé par les campagnes estivales de 2009 et 2010: vers 15h, on observe clairement l'apparition de particules dans la gamme la plus petite, au dessous du mode observé habituellement ; ceci dans un contexte de production d'ozone. La mise en œuvre d'un suivi continu permettra de mieux quantifier l'impact de ces phénomènes de nucléation sur les concentrations annuelles moyennes. Une meilleure compréhension des processus physico-chimiques mis en jeu nécessitera la réalisation de campagnes multi-instrumentées permettant l'étude des précurseurs gazeux ainsi que des agents et produits d'oxydation.

Tableau 8 : Bilan de l'action « suivi dans le temps » au regard des objectifs initiaux

Objectif	Actions menées	Résultats	Perspectives
Documenter les caractéristiques des particules submicroniques. dans le temps	Gennevilliers (station urbaine de fond parisienne) : Campagnes hivernales de 5 semaines (2003 – 2009) puis allongées (2010-2011) Depuis 2009, production de données estivales	<ul style="list-style-type: none"> ✓ 2004 : recherche d'un site pérenne (Gennevilliers confirmé) ✓ Base de données 2003 - 2011 	
Evolution sur le long terme	Analyse statistique de différents paramètres à commencer par la concentration en nombre	Pas de tendance interannuelle nette	Amélioration (en cours) de l'assise statistique grâce au passage à un mesurage quasi-permanent
Compréhension	<p>Les facteurs d'influence de la variabilité de l'aérosol ont été recherchés, notamment au niveau de son cycle journalier.</p> <p>La base de données a été enrichie en conséquence, et des outils statistiques ont été mis en œuvre.</p> <p>Nous avons bénéficié des efforts d'AIRPARIF en matière d'inventaire d'émissions.</p>	<p>Nous sommes parvenus à :</p> <ul style="list-style-type: none"> ✓ identifier un cycle journalier pour la concentration en nombre (totale, sous-groupes) ✓ produire un schéma de compréhension hivernal ✓ décrire la situation estivale, avec mise en évidence de photochimie 	<ul style="list-style-type: none"> ✓ Etude de sensibilité sur le rayon (trafic) ✓ Amélioration des inventaires d'émissions (chauffage urbain, autres sources) ✓ Approfondir l'étude de la saison chaude (photochimie) ✓ Prendre en compte la composition de l'aérosol

4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Le présent rapport permet de synthétiser les résultats obtenus depuis 2003 par le LCSQA, d'une part en ce qui concerne l'instrumentation (chapitre 2) et d'autre part, en ce qui concerne le suivi dans le temps sur le site de Gennevilliers (chapitre 3).

Les travaux réalisés en partenariat avec Airparif sur le site de Gennevilliers mettent en évidence les rôles majeurs joués par le trafic automobile et, dans une moindre mesure, par les processus photochimiques, sur les niveaux de concentration de particules ultrafines en région parisienne. Avant 2011, la durée des campagnes était cependant trop brève pour permettre d'étudier l'évolution sur le long terme des concentrations en nombre. Pour ce faire, il convient de passer de campagnes de mesure de quelques semaines à un mesurage quasi-permanent, tel que celui réalisé par les réseaux de recherche opérationnels de type GUAN (Allemagne). Les travaux engagés dans ce sens depuis 2011 sur le site de Gennevilliers constituent une étape importante pour l'étude des variations interannuelles des concentrations de particules ultrafines et de leur aptitude à servir d'indicateur d'impact des politiques publiques destinées à l'amélioration de la qualité de l'air.

Aujourd'hui, il apparaît également nécessaire de chercher à mieux appréhender les variations spatiales des contributions des différentes sources anthropiques et processus atmosphériques sur les concentrations en particules ultrafines, aussi bien à l'échelle nationale qu'à proximité immédiate des sources.

D'un point de vue métrologique, les travaux réalisés au cours des dernières années ont permis d'évaluer les performances sur le terrain du granulomètre 3031, de conception récente et ne nécessitant pas l'utilisation de source radioactive ni de butanol *a contrario* des SMPS (« Scanning Mobility Particle sizer ») classiquement utilisés pour la caractérisation physique des particules fines. A ce stade, et étant donné les difficultés posées par l'utilisation de sources radioactives sur le territoire national, le 3031 semble être l'instrument le plus indiqué pour les activités de surveillance. La réflexion n'est cependant pas close, avec notamment l'émergence de nouvelles pistes instrumentales (compteur à eau), mais aussi le besoin de poursuivre les exercices de comparaison avec un SMPS et de recueillir de nouveaux retours d'expérience. Dans cette optique, les travaux sur l'instrumentation, et en particulier sur le 3031, sont appelés à prendre une place grandissante dans l'activité du LCSQA/INERIS sur les particules submicroniques. En effet, les récentes initiatives de plusieurs AASQA dans le cadre de programmes régionaux basés sur la mise en œuvre de 3031 nécessitent l'intensification d'échanges techniques impliquant tout particulièrement Air Rhône-Alpes, le LCSQA/INERIS, le vendeur TSI, le fabricant TOPAS, et l'université de Leipzig (équipe du Pr. Wiedensohler de l'IfT) prise comme référence technique et scientifique pour son implication dans différents réseaux de recherche européens (EMEP, EUSAAR, ACTRIS, GUAN, ...).

Ces échanges ont notamment conduit à la révision par le constructeur de son principe d'étalonnage ainsi qu'à la réalisation début 2012 d'un exercice d'intercomparaison au laboratoire mettant en œuvre 2 instruments de type 3031 de nouvelle génération et le SMPS de référence de l'IfT. Les résultats obtenus lors de cet exercice sont globalement encourageants mais soulignent l'importance d'une vérification régulière de la stabilité des mesures dans le temps (Ustache 2012). Une seconde intercomparaison sera organisée par le LCSQA/INERIS mi-2012 dans les conditions réelles de prélèvement. Cet exercice regroupera les deux granulomètres d'Air Rhône-Alpes, deux instruments identiques en cours d'acquisition par AIRAQ ainsi que le 3031 et le SMPS de l'INERIS, utilisés sur le site de Gennevilliers depuis 2003.

5. VALORISATION

- Godard 2003 - "Aérosol submicronique en site urbain de fond : cas de la station de Gennevilliers, hiver 2003", P. Godard, O. Le Bihan, H. Marfaing, O. Blanchard, G. Tymen, Congrès Français Aérosol, Paris, Décembre 2003.
- Le Bihan 2004 - "Size distribution and number concentration of the 10-500 nm aerosol at an urban background site, Gennevilliers, Paris Area", O. Le Bihan, P. Godard, H. Marfaing and M. Ramel, European Aerosol Conference, Budapest, September 2004.
- Malherbe 2009 - "Determination of the main sources and influence factors of submicronic particles pollution. Study of a French urban site.", Laure Malherbe, Olivier Le Bihan, Cécile Honoré, H. Marfaing, European Federation of Clean Air and Environmental Protection Associations (EFCA) International Symposium, Brussels, Belgium, May 19 and 20, 2009.
- Le Bihan 2010 - "IDENTIFICATION DES SOURCES ET FACTEURS D'INFLUENCE DE LA POLLUTION AUX PARTICULES ULTRAFINES AU NIVEAU D'UN SITE DE FOND PARISIEN.", O. Le Bihan, L. Malherbe, C. Honoré, H. Marfaing, Congrès Français sur les Aérosols, 13-14 janvier 2010, Paris.
- Le Bihan 2011 – « Aérosol, santé et environnement : de la prise de conscience à la prise en charge. », lecture plénière, Congrès Français sur les Aérosols, 13-14 janvier 2011, Paris.
- Malherbe 2011 –: “ Study of the submicronic particle pollution at a French urban site”, Laure Malherbe, Olivier Le Bihan, Cécile Honoré, H. Marfaing, European Federation of Clean Air and Environmental Protection Associations (EFCA) International Symposium, Brussels, Belgium, May 2011.

6. REFERENCES

- Cyrus et al., 2008 – *Spatial and temporal variation of particle number concentration in Augsburg, Germany*. Cyrus J., Pitz M., Heinrich J., Wichmann H.-E., Peters A., *Science of the Total Environment*, 401, 168-175 (2008).
- Gramsch et al., 2009 - *Predominance of soot-mode ultrafine particles in Santiago de Chile: Possible sources*. Gramsch E., Gidhaden L., Wahlin P., Oyola P., Moreno F., *Atmospheric Environment*, 43, 2260-2267 (2009).
- Janssen et al., 2011 – *Black carbon as an additional indicator of the adverse health effects of airborne Particles Compared with PM₁₀ and PM_{2.5}*, *Environmental Health Perspective*, 12, 1691-1699
- Johansson et al., 2007 - *Spatial & temporal variations of PM₁₀ and particle number concentrations in urban air*. Christer Johansson · Michael Norman · Lars Gidhagen, *Environ Monit Assess*, 127, 477–487 (2007).
- Le Bihan 2004 – « *Surveillance des particules submicroniques* », rapport LCSQA, 2004.
- Le Bihan et Mathé, 2005 – « *Surveillance des particules submicroniques* », rapport LCSQA DRC/AIRE-05-64997-OLe-n°745-V2a, 2005.
- Le Bihan et Mathé, 2006 - « *Connaissance de la pollution par les particules submicroniques* », rapport LCSQA DRC/AIRE-06-74752-OLe-N°0803-v4, 2006.
- Le Bihan et Malherbe, 2008 – “*Connaissance de la pollution par les particules submicroniques*”, rapport LCSQA DRC-08-94293-15182A, 2008.
- Martin et al., 2009 - *Ultrafine particle fluxes above four major European cities*. Martin C.L., Longley I.D., Dorsey J.R., Thomas R.M., Gallagher M.W., *Atmospheric Environment*, 43, 4714-4721 (2009).
- Morawska et al., 2008 – *Review - Ambient nano and ultrafine particles from motor vehicle emissions: Characteristics, ambient processing and implications on human exposure*. L. Morawska*, Z. Ristovski, E.R. Jayaratne, D.U. Keogh, X. Ling, *Atmospheric Environment* 42, 8113 – 8138 (2008)
- Moore et al., 2007 – *Daily variation in the properties of urban ultrafine aerosol – Part I: Physical characterization and volatility*. Katharine F. Moorea, Zhi Ninga, Leonidas Ntziachristosa, James J. Schauerb, Constantinos Sioutas, *Atmospheric Environment*, 41, 8633–8646 (2007).
- Reche et al., 2011 – *New considerations for PM, Black Carbon and particle number concentration for air quality monitoring across different European cities*, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 6207-6227.
- Ruuskanen et al., 2001 – *Concentrations of ultrafine, fine and PM_{2.5} particles in three European cities*. Ruuskanen J., Tuch Th., Brink H.T., Peters A., Khlystov A., Mirme A., Kos G.P.A., Brunekreef B., Wichmann

- H.E., Buzorius G., Vallius M., Kreyling W.G., Pekkanen J., Atmospheric Environment, 35, 3729-37386 (2001).
- Seigneur et al. 2009 - *Current Understanding of Ultrafine Particulate Matter Emitted from Mobile Sources*. Christian Seigneur, Journal of the Air & Waste Management Association, Volume 59 January 2009
 - Sioutas 2005 - *Exposure Assessment for Atmospheric Ultrafine Particles (UFPs) and Implications in Epidemiologic Research*, Constantinos Sioutas,¹ Ralph J. Delfino,² and Manisha Singh¹, Environmental Health Perspectives, volume 113, number 8, August 2005.
 - Ustache 2012, note sur intercomp. Leipzig
 - Zhao et al., 2009 - *Seasonal and diurnal variations of ambient PM_{2.5} concentration in urban and rural environments in Beijing*. Zhao X., Zhang X., Xu X., Xu J., Meng W., Pu W., Atmospheric Environment, 43, 2893-2900 (2009).