

## Note technique

*Travaux financés par le ministère chargé de l'environnement*

### MESURE DES PARTICULES ULTRAFINES AU SEIN DU DISPOSITIF NATIONAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITE DE L'AIR

Ineris

#### 1. CONTEXTE

La surveillance du nombre, de la distribution en taille (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. Depuis la fin des années 90, la communauté scientifique européenne a développé des actions consacrées à la mesure des particules submicroniques (de diamètre inférieur à 1  $\mu\text{m}$ ), et notamment les particules ultrafines (PUFs), particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à 100 nm (0,1  $\mu\text{m}$ ).

Mi-2018, l'Anses a publié un rapport recommandant notamment de renforcer la surveillance des PUFs, classées comme polluants prioritaires (catégorie 1). Le groupe d'experts à l'origine de ce rapport a notamment considéré que les données épidémiologiques montraient l'existence d'effets sanitaires avérés. Suite à cette publication, le ministère en charge de l'environnement a demandé au LCSQA d'étudier les besoins d'évolutions du réseau de surveillance nationale actuel pour y répondre.

##### 1.1/ 2003-2010 : développement de l'expertise LCSQA

Dans le cadre du LCSQA, l'Ineris travaille depuis 2003 sur la mesure des PUFs, avec pour objectif principal de caractériser leurs niveaux de concentrations par la mise en œuvre, sur le terrain, de mesures de comptage et de la distribution en taille de ces particules.

Ces travaux ont permis d'assurer un suivi du nombre et de la granulométrie des particules submicroniques sur le site de fond urbain de Gennevilliers, lors de campagnes de mesure ponctuelles menées en collaboration avec AirParif (ces campagnes sont reconduites annuellement en été et en hiver). Ces travaux ont mis en évidence le rôle joué par le trafic automobile, probablement important, auquel s'ajoutent en été les processus photochimiques, sur les niveaux de concentrations de PUFs en région parisienne [5].

Les compétences ainsi développées au sein du LCSQA/Ineris ont permis à la France de jouer un rôle important dans les travaux de normalisation qui ont démarré au niveau européen (CEN) à compter de 2009 sur le thème de la surveillance des PUF en air ambiant.

### 1.2 / 2011-2018 : développement d'un noyau d'acteurs parmi les AASQA

A compter de 2011, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, Atmo Nouvelle Aquitaine, puis Atmo Sud ont également développé des initiatives régionales sur le thème des PUFs.

Le LCSQA/Ineris a alors transformé son activité de mesure en un soutien scientifique et technique aux Aasqa. En 2011, un groupe de travail (GT PUF) a été créé. Animé par le LCSQA/Ineris, il a permis de fédérer les différents acteurs nationaux. Depuis, en plus des participants initiaux de nombreuses autres structures se sont jointes au dispositif : Atmo Hauts de France (2017), Qualitair Corse (2018), Atmo Grand Est (2019).

Le support technique apporté par le LCSQA/Ineris a permis de mieux connaître les performances des technologies disponibles, de former les utilisateurs, de favoriser les échanges entre utilisateurs, de pousser le constructeur à faire des améliorations. Il a également permis de soutenir les AASQA dans leur stratégie de déploiement, et de valorisation des données.

## 2. INSTRUMENTATION

---

### 2.1 Technologies disponibles

Il existe à l'heure actuelle sur le marché trois technologies pour la mesure des PUFs (cf. tableau ci-dessous). Les travaux menés par le LCSQA/Ineris et les Aasqa alimentent au fil de l'eau cet état de l'art.

Des efforts restent nécessaires pour s'assurer du bon fonctionnement sur le terrain de l'ensemble de ces technologies (étude de faisabilité prévue à partir de 2019 sous la responsabilité du LCSQA/LNE). Le tableau ci-dessous permet d'identifier quelques-uns des sujets à traiter.

	CPC	UFP 3031	SMPS
Apparition sur le marché	Technologie : années 70. Appareil pour air ambiant selon norme CEN TS 16976 (2016) : disponible depuis ~2016.	Appareil pour air ambiant : ~2009	Technologie : années 90. Appareil pour air ambiant selon norme CEN <b>Erreur ! Source du renvoi introuvable.</b> /TC <b>Erreur ! Source du renvoi introuvable.</b> /WG 32 N 173 : la norme étant non publiée à ce jour, impossibilité de faire un achat garantissant la compatibilité future.
Ordre de grandeur du prix à l'achat	30 k€ avec ligne de prélèvement	45 k€ avec ligne de prélèvement	80 k€ avec ligne de prélèvement
Métrieque	Nbre total de particules (p/cm <sup>3</sup> )	Nbre de particules (p/cm <sup>3</sup> ) selon 6 classes de taille	Nbre de particules (p/cm <sup>3</sup> ) selon plusieurs dizaines de classes de taille
Gamme de taille	1 canal unique, approximativement dans la gamme [7 nm – 1µm]	6 canaux dans la gamme de taille [20 - 800 nm]	Typiquement 64 canaux approximativement dans la gamme [10 - 800 nm]
Normalisation CEN air ambiant	1 norme publiée	A ce jour, pas de projet de norme	1 norme en cours de rédaction
Fournisseurs de matériels utilisés en France	Palas (Allemagne), TSI (USA), Grimm (Allemagne)	Fabriqué par TOPAS (Allemagne) et commercialisé par TSI (USA)	Grimm (Allemagne), Palas (Allemagne), TSI (USA), Institut Tropos, (Leipzig, Allemagne)
Avantages	L'appareil fournit une information unique (la concentration totale en nombre), ce qui facilite la gestion de données et la communication. Excellente limite de quantification (< 10 p/cm <sup>3</sup> ). Technologie soutenue par une norme CEN.	La résolution en taille est limitée (6 canaux) mais facilite l'exploitation des données. Pas d'utilisation d'alcool odorant. Facilité d'utilisation en réseau	La résolution en taille élevée permet une description plus fine de phénomènes tels que la photochimie. Technologie citée dans une projet de norme CEN.
Inconvénients	La norme CEN impose l'usage de butanol, alcool odorant et interfèrent potentiel pour certaines mesures de gaz. Absence de description en taille : mesure de la concentration totale en nombre de particules submicroniques (< 1 µm). Résultats dominés par les PUF, néanmoins mesures non spécifiques (inclus également les particules entre 0.1 et 1 µm).	Le canal 200-800 nm a une limite de quantification proche des concentrations de fond (plutôt un « indicateur »). Un seul fabricant A ce stade, pas de projet de norme CEN.	La norme CEN impose l'usage de butanol, alcool odorant et interfèrent potentiel pour certaines mesures de gaz. Certaines technologies utilisent une source radioactive (contraintes administratives significatives en France). L'utilisation d'une source rayons X est autorisé par le projet de norme. Relative complexité de la technologie. La résolution en taille est élevée ce qui induit un effort de gestion significatif.
Perspectives	L'usage du butanol constitue actuellement un problème majeur pour les utilisateurs. Plus globalement, le niveau de maturité des produits proposés et le niveau de formation des utilisateurs ne sont pas suffisants. Par conséquent, un support technique significatif serait nécessaire pour rendre cette technologie réellement opérationnelle.	Etudier possibilité de soutien par la normalisation. La gamme de taille démarre à 20 nm : l'intérêt de la gamme 10 – 20 nm, voire 5 – 20 nm doit être discutée.	AIRPARIF vient de s'équiper d'un SMPS de la marque Palas, ce qui permettra de disposer d'un Rex aussi bien sur la mise en œuvre opérationnelle dans une station de mesure de cette technologie que sur l'exploitation des résultats.

## 2.2 Historique de la mise en place de la surveillance

L'approche mise en œuvre dès 2003 par le LCSQA/Ineris s'appuie sur la réalisation de campagnes de mesure ponctuelles (typiquement de 5 semaines) mettant en œuvre des granulomètres de laboratoire de type SMPS (10 – 500 nm) et APS (0,5  $\mu\text{m}$  – 20  $\mu\text{m}$ ) commercialisés par la société TSI.

A partir de 2009, nous avons cherché à allonger les périodes étudiées afin de bénéficier d'une meilleure assise statistique, et pour anticiper la possibilité d'une surveillance permanente. Pour ce faire, nous avons porté nos efforts sur l'étude d'un nouveau granulomètre développé spécifiquement pour la surveillance en air ambiant, l'UFP 3031 (société TSI). Cet appareil a montré sa capacité à fonctionner 24h/24 sur le terrain, même si des besoins d'amélioration ont été identifiés.

En 2011, le LCSQA et les Aasqa se sont focalisés sur la question majeure du choix de la technologie [2]. Au final, la technique SMPS a été jugée comme trop onéreuse et trop contraignante pour une surveillance opérationnelle en continu, posant différentes difficultés pour un réseau (complexité, usage de butanol, à l'époque utilisation obligatoire de sources radioactives, etc.). L'UFP 3031, instrument certes émergent mais moins complexe et moins coûteux a semblé être la voie la plus indiquée pour les activités de surveillance par une Aasqa.

Afin d'accompagner les utilisateurs de l'UFP 3031, le LCSQA/Ineris a organisé des exercices de comparaison inter-laboratoires [3, 4] visant à mieux connaître les performances du granulomètre UFP 3031 ainsi qu'à veiller à l'homogénéité des mesures réalisées au sein du dispositif national. Le LCSQA/Ineris a organisé et animé un système d'échange permanent avec le constructeur, a mis en place des actions de formation, a animé un réseau de techniciens utilisateurs et a publié en 2016 un guide d'utilisation [1], capitalisant l'ensemble du savoir-faire sur cet instrument.

La réflexion sur le choix instrumental n'est cependant pas close, et reste d'actualité dans un contexte de redimensionnement du dispositif et d'orientation vers une surveillance pérenne.

## 2.3 Le dispositif actuel

Les stations fixes sont pour l'essentiel en milieu urbain et trafic (Figure 1), selon la répartition suivante :

- Sites urbains de fond : ~3 (Bordeaux, Lyon, Grenoble)
- Sites urbains de proximité automobile : ~4 (Grenoble, Lille, Paris, Marseille)
- Site industriel : ~1 (Laq)
- Appareils utilisés sur des campagnes ponctuelles : ~3 (Hauts de France, PACA ; bientôt Grand Est et Paris).

La majorité des données produites à ce jour proviennent d'UFP 3031. Les données ne remontent pas à ce stade sur la base de données du dispositif national (GEOD'AIR), mais cette remontée doit être inscrite dans le plan de travail à venir.

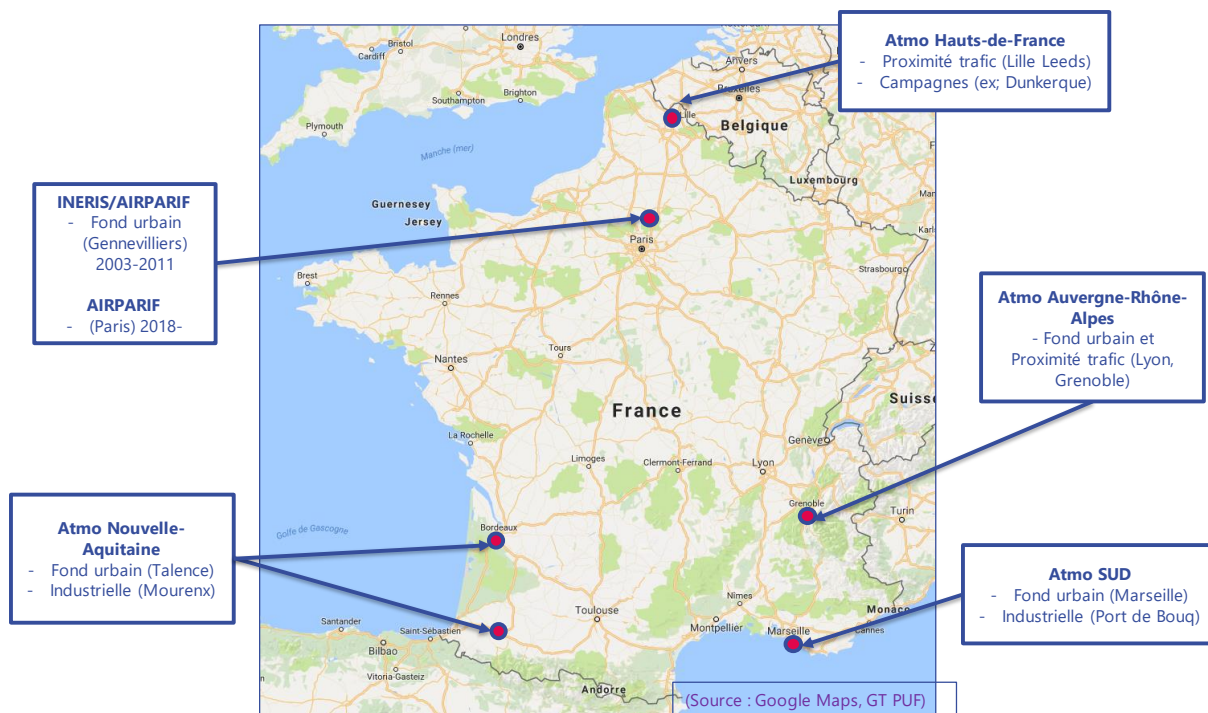


Figure 1 : Carte de France des sites de surveillance des PUF (source : GT PUF).

### 3. PERSPECTIVES D'ORIENTATION DU DISPOSITIF

La définition des objectifs de surveillance *via* des échanges avec les acteurs de santé publique doit être un préalable au renforcement de la surveillance de la mesure des PUFs.

Les instruments disponibles ne permettent d'atteindre directement qu'une concentration en nombre : le passage à des concentrations massiques requiert des hypothèses fortes pour le recalcul de la surface et/ou de la masse (sphéricité, densité des particules). Les échanges, notamment avec l'Anses, seront déterminants sur le choix des grandeurs à mesurer et de(s) technologie(s) à mettre en œuvre par les Aasqa au regard de l'exploitation qui pourra être faite des résultats et des incertitudes associées.

Il est également essentiel que cette réflexion se fasse dans un cadre plus général pour s'inscrire dans la logique d'ensemble de la surveillance des particules sur le territoire. C'est pourquoi un nouveau GT vient d'être créé au sein du dispositif national de surveillance pour aborder conjointement les sujets relatifs aux PUFs et ceux relatifs au carbone suie, polluant également classé en catégorie 1 par le rapport de l'Anses.

En conséquence, en complément des échanges avec les acteurs de la santé, il est proposé à court et moyen terme de mettre en place des actions techniques notées ci-dessous, certaines sont déjà inscrites dans le programme de travail du LCSQA pour 2019 :

- ↳ S'accorder sur la limite inférieure de mesure du diamètre qui doit être prise en compte pour la surveillance compte tenu des travaux en cours (actuellement 20 nm pour l'UFP 3031, 7 nm pour le CPC).
- ↳ Etudier le réseau existant et ceux d'autres pays européens ayant mis en place cette surveillance pour accompagner une éventuelle extension du réseau national ou des études ciblées dans des environnements prioritaires.

- ↳ Elargir les guides métrologiques du LCSQA à d'autres types de techniques que l'UFP 3031.
- ↳ Etablir une chaîne d'étalonnage et organiser des campagnes de comparaison inter-laboratoires en tenant compte des travaux de normalisation en cours au niveau européen.
- ↳ Apporter un soutien (métrologie, données) aux études sanitaires associées à la mesure de ces paramètres de façon à définir les pertinents à mesurer.

#### 4. CONCLUSION

---

A ce jour l'ensemble des appareils déployés sur le terrain permet d'avoir des indications sur les concentrations en PUFs (nombre de particules par cm<sup>3</sup> ou p/cm<sup>3</sup>) en fonction de différents types de zones observées et d'en suivre les évolutions temporelles. En faisant abstraction des fluctuations saisonnières et des spécificités propres à chaque site de mesure, on peut estimer que la concentration totale en nombre se situe au-dessous de 4.000 p/cm<sup>3</sup> en milieu rural, et au-dessus de 10.000 p/cm<sup>3</sup> à proximité du trafic automobile ; elle se situe entre ces deux valeurs pour les sites urbains de fond.

Toutefois, il ne s'agit pas à proprement parler d'un dispositif systématique et complet, qui reste à définir en fonction d'objectifs à préciser.

Les solutions technologiques disponibles pour un tel dispositif portent sur la mesure de la concentration en nombre, et pour certains instruments celle de la distribution en taille. Si des études sur la morphologie et la chimie des PUF existent, elles relèvent non pas de la surveillance mais de la recherche appliquée. La priorité serait de consolider le suivi des métriques disponibles (nombre et taille) et d'exploiter les données ainsi produites d'un point de vue sanitaire ; il sera alors possible d'évaluer la pertinence de ces métriques et de déterminer si elles doivent être complétées par d'autres (à identifier et à rendre opérationnelles pour une mesure en continu).

Outre les travaux de normalisation en cours, il est nécessaire que l'ensemble des questions traitées ci-dessus soient abordées à l'échelle européenne pour permettre un partage des expériences et une harmonisation des pratiques.

Par ailleurs, bien que les critères de tailles soient les mêmes, les PUFs sont à distinguer des « Substances à l'état nanoparticulaire » dans la mesure où celles-ci sont définies comme « fabriquées intentionnellement » (Art. R. 523-12 du Code de l'Environnement). Il est à noter que l'identification des « substances à l'état nanoparticulaire » dans un aérosol nécessite le recours à la microscopie électronique et à l'analyse chimique. Les méthodes disponibles pour la surveillance des PUFs ne répondent pas à cette question.

## 5. REFERENCES

---

- [1] Dalle M., « Recommandations techniques pour l'utilisation du granulomètre de type UFP 3031 », rapport LCSQA DRC-15-152367-12401A.
- [2] Ustache A. Le Bihan O., Favez O., « Synthèse des travaux 2012-2013 sur le granulomètre de type UFP 3031 », rapport LCSQA DRC-14-144358-12629A.
- [3] Le Bihan O., Dalle M., « Intercomparaison 2015 sur les granulomètres UFP 3031 », rapport LCSQA DRC-15-152367-11727A.
- [4] Le Bihan O., Dalle M., Meunier L., « Intercomparaison 2014 sur les granulomètres UFP 3031 », rapport LCSQA DRC-14-144358-12985A.
- [5] Le Bihan, Malherbe et Ustache, 2012 - Connaissance du nombre et de la distribution granulométrique des particules submicroniques - Suivi dans le temps, métrologie : bilan des travaux 2003-2011, rapport LCSQA DRC-11-118212-13897A, 2012.