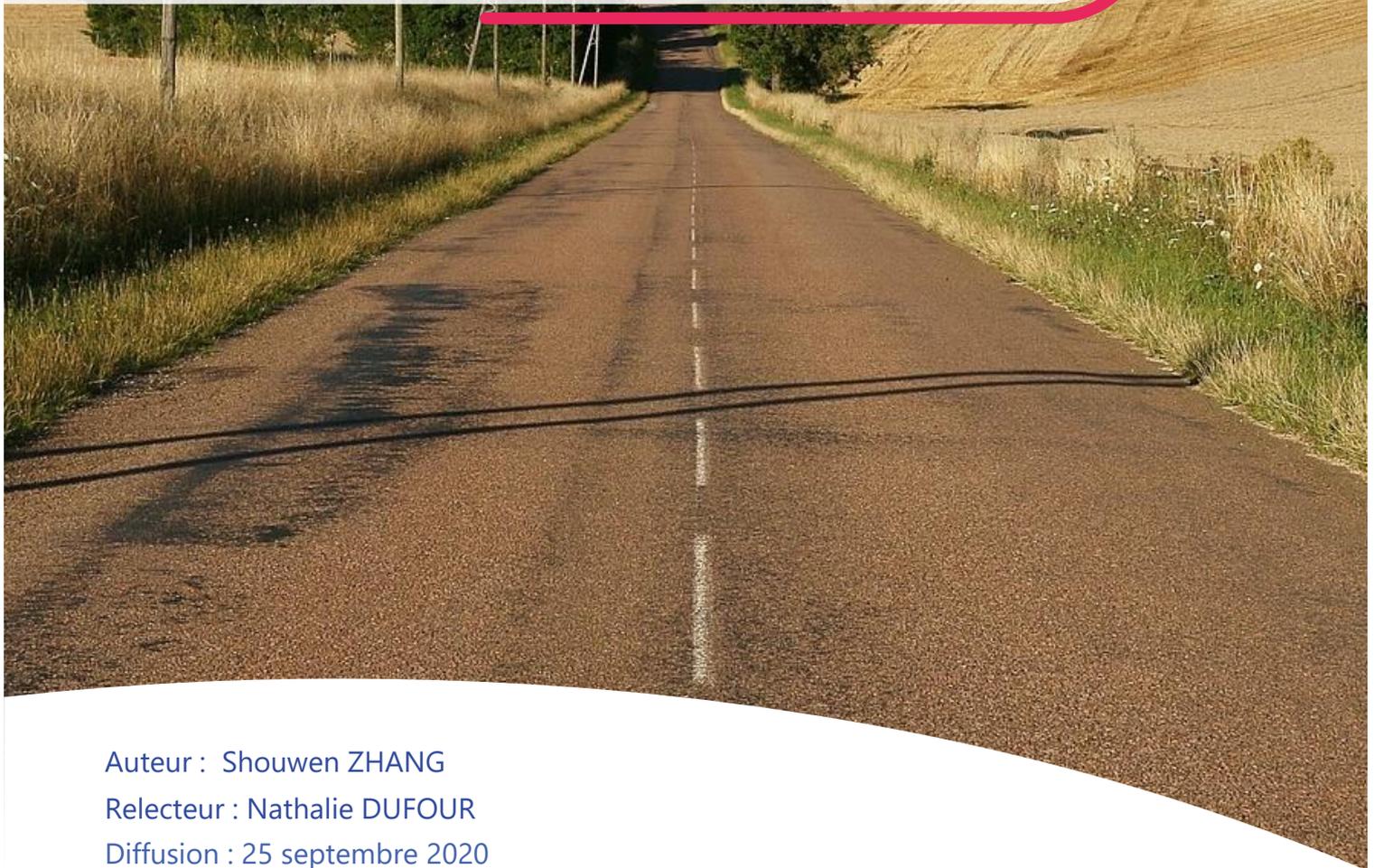


# RAPPORT D'ETUDE

## Intercomparaison de dispositifs de mesure en continu des particules ultrafines en air ambiant

N°01/2019/SZ/V0

Etude menée en 2019



Auteur : Shouwen ZHANG  
Relecteur : Nathalie DUFOUR  
Diffusion : 25 septembre 2020



# Avant-propos

Atmo Hauts-de-France est une association de type « loi 1901 » agréée par le Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire (décret 2007-397 du 22 mai 2007) au même titre que l'ensemble des structures chargées de la surveillance de la qualité de l'air, formant le réseau national ATMO. Ses missions s'exercent dans le cadre de la loi sur l'air du 30 décembre 1996. Atmo Hauts-de-France est agréée du 1<sup>er</sup> janvier au 31 décembre 2019, au titre de l'article L.221-3 du Code de l'environnement.

## Conditions de diffusion

Atmo Hauts-de-France communique publiquement sur les informations issues de ses différents travaux et garantit la transparence de l'information sur le résultat de ses travaux. A ce titre, les rapports d'études sont librement disponibles sur le site [www.atmo-hdf.fr](http://www.atmo-hdf.fr).

## Responsabilités

Les données contenues dans ce document restent la propriété intellectuelle d'Atmo Hauts-de-France. Ces données ne sont pas rediffusées en cas de modification ultérieure. Les résultats sont analysés selon les objectifs de l'étude, le contexte et le cadre réglementaire des différentes phases de mesures, les financements attribués à l'étude et les connaissances métrologiques disponibles.

## Avertissement

Atmo Hauts-de-France n'est en aucune façon responsable des interprétations et travaux intellectuels, publications diverses ou de toute œuvre utilisant ses mesures et ses rapports d'études pour lesquels aucun accord préalable n'aurait été donné.

Toute utilisation partielle ou totale de ce document (extrait de texte, graphiques, tableaux, ...) doit faire référence à l'observatoire dans les termes suivants : © **Atmo Hauts-de-France – Rapport N°01/2019/SZ/V0**. En cas de remarques sur les informations ou leurs conditions d'utilisation, prenez contact avec Atmo Hauts-de-France :

- depuis le formulaire de contact disponible à l'adresse <http://www.atmo-hdf.fr/contact.html>
- par mail : [contact@atmo-hdf.fr](mailto:contact@atmo-hdf.fr)
- par téléphone : 03 59 08 37 30

## Réclamations

Les réclamations sur la non-conformité de l'étude doivent être formulées par écrit dans les huit jours de la livraison des résultats. Il appartient au partenaire de fournir toute justification quant à la réalité des vices ou anomalies constatées. Il devra laisser à Atmo Hauts-de-France toute facilité pour procéder à la constatation de ces vices pour y apporter éventuellement remède. En cas de litige, un accord amiable sera privilégié. Dans le cas où une solution n'est pas trouvée la résolution s'effectuera sous l'arbitrage des autorités compétentes.

	Nom	Qualité	Visa
Approbation	Nathalie Dufour	Responsable du Service Etudes	

Version du document : V2 basé sur trame vierge : EN-ETU-20

Date d'application : 01/01/2020

# Sommaire

<b>1. Synthèse de l'étude.....</b>	<b>6</b>
<b>2. Enjeux et objectifs de l'étude .....</b>	<b>7</b>
<b>3. Matériels et méthodes.....</b>	<b>8</b>
3.1. Localisation et durée de la campagne .....	8
3.2. Matériel utilisé.....	8
3.3. Validation des données .....	12
3.4. Méthode utilisée.....	13
<b>4. Résultats de l'étude .....</b>	<b>15</b>
4.1. Concentration totale en nombre.....	15
4.2. Distribution en taille.....	28
<b>5. Quel appareil pour quelle situation ? .....</b>	<b>32</b>
<b>6. Conclusion et perspectives.....</b>	<b>33</b>

# Annexes

<b>Annexe 1 : Glossaire.....</b>	<b>35</b>
<b>Annexe 2 : Caractérisation des 3 technologies pour mesurer les PUF.....</b>	<b>36</b>
<b>Annexe 3 : Corrélations de la concentration totale en nombre entre le CPC et les MPSS .....</b>	<b>37</b>
<b>Annexe 4 : Ecart type de la distribution en taille .....</b>	<b>38</b>

# Illustrations

Figure 1 Localisation du site d'intercomparaison .....	8
Figure 2 Photo et plan interne de la cabine principale.....	10
Figure 3 Photos de certains instruments dans la cabine.....	10
Figure 4 Photos des remorques : Airparif et ISSeP.....	11
Figure 5 Photos intérieures des remorques .....	11
Figure 6 Disponibilité de chaque instrument pendant la campagne (vert : période de production de données : rouge : période sans donnée).....	12
Figure 7 Concentration de particules pour la résolution de 64 canaux et de 32 canaux.....	14
Figure 8 Séries temporelles de tous les instruments pendant la campagne d'intercomparaison .....	17
Figure 9 Séries temporelles de tous les instruments au début de la campagne .....	17
Figure 10 Séries temporelles de tous les instruments à la fin de la campagne .....	18
Figure 11 Série temporelle de 3 CPC pendant la campagne d'intercomparaison.....	18
Figure 12 Séries temporelles de 3 CPC au début de la campagne .....	19
Figure 13 Séries temporelles de 3 CPC à la fin de la campagne .....	19
Figure 14 Corrélation de la série temporelle entre 3 CPC .....	20
Figure 15 Série temporelle des UFP 3031 comparé avec les CPC .....	21
Figure 16 Corrélation de la somme totale et de chaque canal entre 2 UFP 3031 .....	23
Figure 17 Corrélation entre les UFP 3031 et les CPC .....	24
Figure 18 Série temporelle du CPC 3750 et des MPSS .....	25
Figure 19 Corrélation entre le CPC 3750 et les MPSS .....	26
Figure 20 Corrélation entre le CPC Palas et les MPSS.....	26
Figure 21 Distribution en taille (dN/dLogDp) au début de la campagne (moyenne 24h) .....	29
Figure 22 Distribution en taille (dN/dLogDp) au milieu de la campagne (moyenne 24h).....	29
Figure 23 Distribution en taille (dN/dLogDp) à la fin de la campagne (moyenne 24h).....	30
Figure 24 Distribution en taille (dN/N/dLogDp) au début/au milieu/à la fin de la campagne.....	31
Figure 25 L'écart type de la distribution en taille (dN/dLogDp) au début/au milieu/à la fin de la campagne.....	39

# Tableaux

Tableau 1 Résumé des instruments participés à l'intercomparaison .....	12
Tableau 2 Proposition d'un code couleur pour évaluer des résultats.....	15
Tableau 3 Analyse statistique pour tous les instruments durant la campagne (13-29 juin 2019) : résolution à 5 min .....	16
Tableau 4 Analyse statistique pour tous les instruments durant la campagne (13-29 juin 2019) : résolution à 15 min.....	16
Tableau 5 Corrélation entre 3 CPC .....	21
<i>Tableau 6 Corrélation entre deux UFP 3031 .....</i>	<i>23</i>
Tableau 7 Corrélation entre les CPC butanol et les UFP 3031 .....	24
Tableau 8 Corrélation entre les CPC butanol et les MPSS.....	27
Tableau 9 Corrélation entre les MPSS .....	27

# 1. Synthèse de l'étude

Les particules ultrafines (PUF) sont de plus en plus étudiées pour leurs effets néfastes sur la santé et leurs impacts sur le climat. En 2018, l'ANSES (Agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail) a classé les PUF comme polluants prioritaires (catégorie 1) et recommandé une surveillance renforcée au niveau national.

En juin 2019, Atmo Hauts-de-France a organisé un exercice d'intercomparaison de différentes technologies mesurant les PUF en air ambiant. Il s'est déroulé du 12 au 29 juin 2019 à Boves (site d'Atmo Hauts-de-France).

**8 organismes** ont participé : Atmo Hauts-de-France, ISSeP (Belgique), Airparif, Atmo Nouvelle-Aquitaine, <sup>1</sup> LCSQA-LNE (Laboratoire national de métrologie et d'essais), LCSQA-INERIS (Institut national de l'environnement industriel et des risques), Addair (fournisseur) et TSI (fournisseur). **9 instruments** incluant 3 CPC (*Condensation particle counter*), 4 MPSS (*Mobility particle size spectrometers*) et 2 UFP 3031 ont participé à cet exercice. Ce projet a reçu le soutien financier du conseil régional des Hauts-de-France.

**Cet exercice permet de comparer :** i) **la concentration totale** mesurée pour tous les types d'instrument ; ii) **la distribution en taille de particules pour les MPSS et les UFP 3031**. Ces instruments utilisent différentes technologies de mesure et ont des caractéristiques métrologiques parfois très différentes (gamme de mesure, résolution temporelle...), ce qui rend ce type de l'intercomparaison plus complexe à exploiter. Par conséquent, une étape de prétraitement des données est réalisée dans un premier temps.

Pour la concentration totale en nombre, tous les instruments montrent une variation temporelle comparable entre eux pendant la campagne. Les deux CPC à butanol montrent une bonne corrélation entre eux ( $r^2=0.95$ ) et le CPC à eau compte 13-74% de plus de particules que les CPC à butanol. Les deux UFP 3031 ont une corrélation excellente entre eux ( $R^2=0.99$ ). Mais leurs niveaux de concentration sont souvent plus bas que ceux des CPC et la corrélation est faible avec les CPC à butanol ( $R^2= 0,54-0,58$ ). Parmi les MPSS, 2 instruments montrent une bonne corrélation avec les CPC à butanol ( $r^2 = 0.82-0.86$ ).

Tous les MPSS et les UFP 3031 montrent une distribution en taille et en forme similaire, mais avec des niveaux de concentration différents. Le nombre de canaux de l'UFP 3031 (6 canaux) et du Nanoscan (13 canaux) est nettement moins important que les autres MPSS (71-128 canaux), ce qui donne une distribution en taille moins fine en termes de résolution. En général, les écarts plus remarquables sont observés pour les particules inférieures à 20 nm ou supérieures à 200 nm. Le MPSS Tropos et le MPSS Palas affichent une distribution en taille très similaire.

Pendant cet exercice, nous trouvons que la gamme de mesure, les systèmes de prélèvement et le système de séchage peuvent influencer la concentration mesurée. De plus, la connexion du réseau et la saturation du fluide de travail peuvent empêcher le bon fonctionnement de l'appareil.

L'ensemble des résultats obtenus pourrait aider au choix instrumental pour une surveillance nationale à long terme. En perspective, il est important de réorganiser ce type d'exercice pour évaluer les performances d'instruments afin de contrôler et assurer la qualité de mesure.

---

<sup>1</sup> Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

## 2. Enjeux et objectifs de l'étude

La particule ultrafine est définie comme « une particule d'un diamètre nominal inférieur à 100 nm environ », par l'organisation internationale de normalisation (ISO/TC 146/SC 2/WG1 N320). Comme les particules ultrafines (PUF) ont peu de masse, leurs concentrations sont souvent exprimées en nombre de particules (PNC : *particle number concentration*) par unité de volume d'air (e.g. par centimètre cube). A l'heure actuelle, il n'existe pas d'instrument qui mesure uniquement le PNC pour les particules inférieures à 100 nm, mais plutôt dans la gamme submicronique (diamètre < 1 µm). Dans ce rapport, le terme « PUF » correspond aux particules à la concentration en nombre de particules submicroniques.

A cause de leurs petites tailles, les particules ultrafines sont considérées plus toxiques que les particules plus grosses. Elles peuvent non seulement se déposer dans la zone pulmonaire où elles peuvent provoquer une inflammation, mais aussi se déplacer vers le système sanguin, provoquant une variété de maladies (Schulz et al. 2005; Chen et al. 2016).

En juin 2018, l'ANSES (Agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail) a inscrit les PUF et le black carbone (ou le carbone suie) parmi les 13 polluants émergents prioritaires (catégorie 1) pour une surveillance à venir dans l'air ambiant. Elle préconise également la bancarisation des données de ces polluants non réglementés.

Actuellement, il n'existe pas de valeurs limites de référence pour ces polluants. Mais le groupe de travail national envisage des programmes de recherche avec l'ANSES visant à mieux caractériser la toxicologie des PUF et proposer une/des valeurs toxicologiques de référence (VTR) afin de pouvoir disposer à l'avenir de valeurs de référence. Depuis 2019, une stratégie nationale PUF/BC est en cours d'établir en collaboration avec des acteurs de la santé et en tenant compte de la future stratégie européenne.

A l'heure actuelle, il existe trois technologies sur le marché pour mesurer les PUF dans l'air ambiant : le CPC (*Condensation particle counter*), l'UFP 3031 et le MPSS (*Mobility particle size spectrometers*). Leurs caractéristiques principales sont résumées dans la note technique du LCSQA (2019)(Annexe 2).

En juin 2019, Atmo Hauts-de France a organisé un exercice d'intercomparaison d'instruments incluant ces 3 technologies pour mesurer les particules ultrafines. Cet exercice a été indiqué dans la stratégie régionale de la surveillance des PUF réalisée par Atmo HdF en 2017 (Atmo HdF 2017). Ce projet a reçu le soutien financier du conseil régional des Hauts-de-France.

Les objectifs principaux sont :

- Comparer la concentration totale en nombre de particules mesurée par différentes technologies et différents appareils avec la même technologie ;
- Comparer la distribution en taille mesurée par différentes technologies et différents appareils avec la même technologie ;
- Comprendre les éléments majeurs qui pourraient influencer la concentration en nombre et la distribution en taille ;
- Identifier les problèmes techniques rencontrés sur le terrain ;
- Aider au choix instrumental pour une surveillance nationale à long terme.

# 3. Matériels et méthodes

## 3.1. Localisation et durée de la campagne

L'exercice d'intercomparaison a eu lieu du 12 juin au 29 juin 2019 dans les locaux d'Atmo Hauts-de-France à Boves. La commune de Boves est située à neuf kilomètres au sud de la ville d'Amiens et fait partie de la communauté d'agglomération Amiens Métropole.

La typologie du site est péri-urbaine sous l'influence d'un parking (Figure 1). L'installation de la campagne a été réalisée le 12 juin et la désinstallation a eu lieu du 29 juin au 02 juillet 2019 selon les participants.



Figure 1 Localisation du site d'intercomparaison

## 3.2. Matériel utilisé

### 3.2.1. Technologies de mesure



Un CPC (*Condensation Particle Counter*) est un compteur de particules qui fonctionne en faisant passer les particules à travers une zone sursaturée en vapeur générée par un fluide de travail. La vapeur se condense sur les particules afin qu'elles grossissent et puissent être détectées optiquement.

Le fluide de travail le plus utilisé pour les CPC est le butanol. D'autres types de fluide de travail, comme l'eau, l'isopropanol ou le diéthylène-glycol sont également utilisés dans certains modèles. L'inconvénient majeur de l'utilisation de l'alcool odorant (notamment le butanol), est qu'il pourrait interférer avec la mesure de certains polluants gazeux (par exemple, les BTEX : Benzène – Toluène – Ethylbenzène – Xylènes) et présente un risque sanitaire pour les techniciens lors des interventions.

Le CPC mesure le nombre total de particules ( $p/cm^3$ ) dans une gamme définie (par exemple, 7 nm- 800 nm). Il ne fournit pas d'information sur la distribution en taille des particules.

La méthode de CPC à butanol est normalisée sous la référence XP CEN/TS 16976 (2016).

## MPSS

Un MPSS (*Mobility particle size spectrometers*) détermine la distribution en taille des particules, et souvent sous le nom SMPS (*Scanning Mobility Particle Sizer*) ou DMPS (*Differential Mobility Particle Sizer*). Il consiste en un chargeur de diffusion bipolaire pour établir une charge électrique d'équilibre sur les particules, un DMA (*Differential Mobility Analyzer*) pour séparer différentes tailles de particules en fonction de leur mobilité électrique, et d'un compteur de particules (CPC) pour compter le nombre de particules.

Un MPSS peut compter les particules sur 128 classes de taille. Cette résolution en taille très fine permet d'étudier les sources de particules ultrafines et les phénomènes atmosphériques tels que la formation de nouvelles particules.

Les inconvénients principaux de cette méthode sont : i) utilisation de l'alcool odorant comme le fluide de travail ; ii) certains modèles utilisent une source radioactive qui implique des autorisations spécifiques et une gestion particulière ; iii) la bancarisation et l'exploitation de données restent très complexe à cause du nombre de canaux élevé.

Cette technologie est normalisée sous la référence (XP CEN/TS 17434) (2020).

## UFP 3031

L'UFP 3031 permet de mesurer la concentration en nombre de particules sur six canaux de taille entre 20 et 800 nm. Le principe de fonctionnement de cet instrument est basé sur la charge par diffusion des particules, suivie d'un tri des particules par classe de taille en fonction de leur mobilité électrique, et leur comptage à l'aide d'un électromètre.

Les avantages principaux de cet instrument sont : i) il n'utilise aucun fluide de travail pour son fonctionnement ; ii) il peut fournir les informations en taille sans utiliser une source radioactive ; iii) il est assez facile à utiliser en réseau de surveillance (peu de maintenance, données faciles à intégrer dans les systèmes d'acquisition...).

Ses limites principales sont : i) ne pas fournir les informations pour les particules inférieures à 20 nm, qui sont souvent très importantes en concentration en nombre ; ii) il n'existe pas une méthode normalisée par le CEN (Comité européen de normalisation) ; iii) moins de canaux par rapport un MPSS classique.

## 3.2.2. Installation de la campagne

### ☐ Cabine principale

8 instruments ont été installés dans la cabine principale de cette intercomparaison : 2 UFP 3031 (Atmo Hauts-de-France et Atmo Nouvelle-Aquitaine), 2 ENVI-CPC de Palas (Addair et Atmo NA), 1 CPC 3750 (TSI), 1 CPC 3788 (LCSQA-LNE), et 1 SMPS 3938 (TSI). 1 aéthalomètre AE33 (Atmo HdF) a été déployé dans cette campagne mais ses données ne sont pas exploitées dans ce rapport. La cabine est équipée d'une climatisation pour avoir une température stable à 20°C. La photo de la cabine et le plan interne sont présentés sur la Figure 2.

Les UFP 3031 et l'aéthalomètre AE33 utilisent leur propre ligne et tête de prélèvement. Les deux ENVI-CPC (à gauche du plan) prélèvent sur la même ligne d'échantillonnage. Et les 3 instruments de TSI (à droite du plan) partagent également la même ligne de prélèvement et le système de séchage.

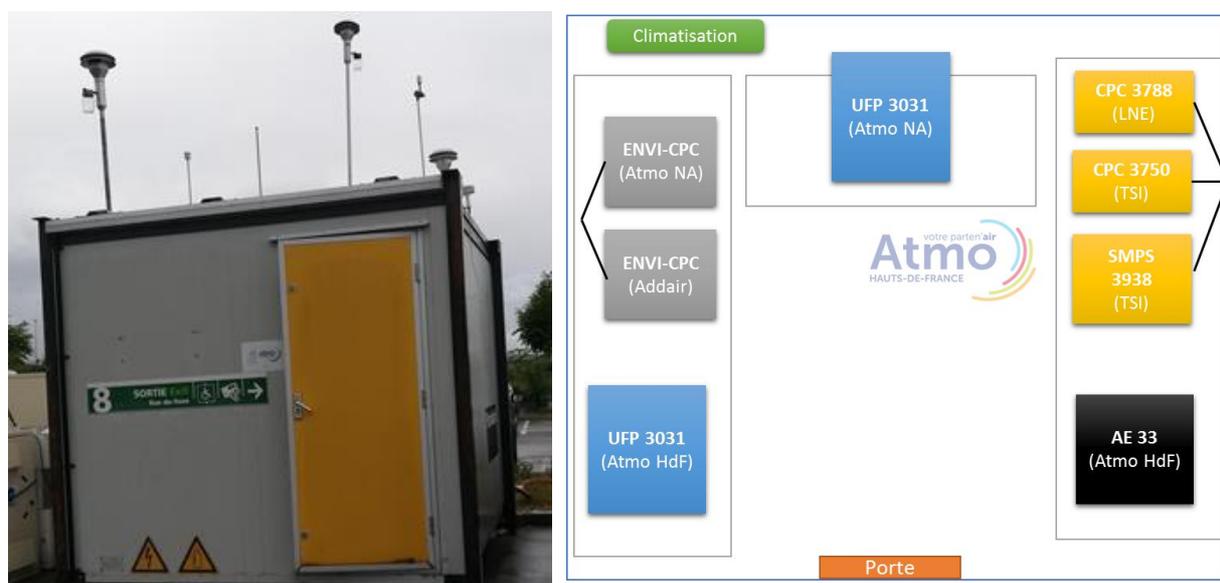


Figure 2 Photo et plan interne de la cabine principale

Les photos de ces instruments et de leurs installations dans la cabine sont présentées sur la Figure 3.

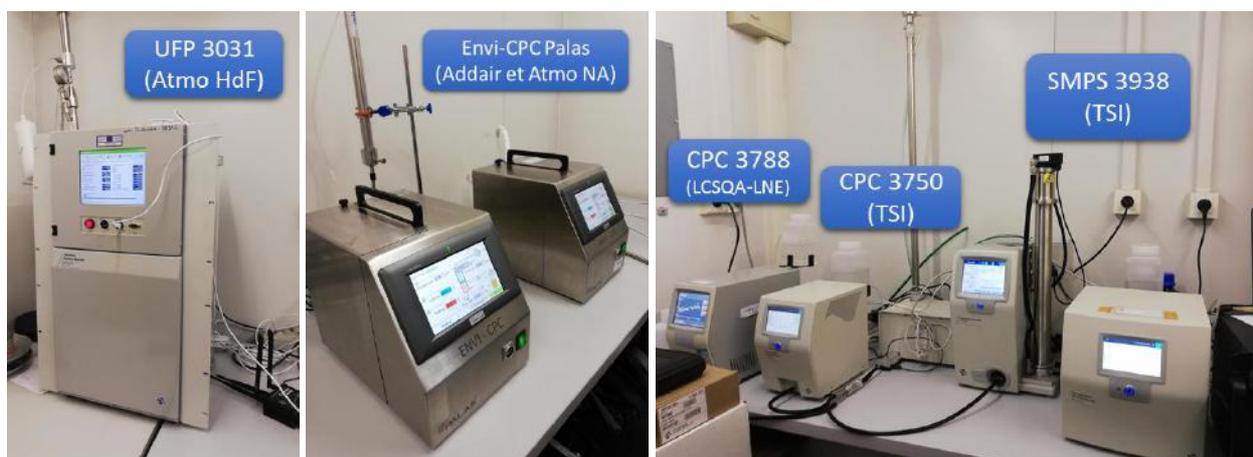


Figure 3 Photos de certains instruments dans la cabine

## Remarques

Airparif et l'ISSeP ont participé à cette campagne avec leur propre remorque ou véhicule équipé. Airparif participe avec un MPSS de Palas et l'ISSeP dispose un MPSS d'un Tropos et d'un SMPS Nanoscan (TSI). Les photos des remorques et véhicules ainsi que les instruments utilisés sont présentés en Figure 4 et Figure 5.



Figure 4 Photos des remorques : Airparif et ISSeP



Figure 5 Photos intérieures des remorques

### 3.2.3. Instruments utilisés

Les caractéristiques de tous les instruments sont résumées dans le Tableau 1. La gamme de mesure pour la plupart des appareils est entre 7 nm à 1000 nm. Le CPC 3788 peut compter les PUF à partir de 2,5 nm et l'UFP 3031 ne commence à mesurer que à partir de 20 nm. Le SMPS 3938 présente une gamme de mesure la plus petite : entre 7- 334 nm. Le nombre de canaux est aussi différent selon la technologie utilisée (entre 6 et 128 canaux).

3 types de sources sont utilisés par les MPSS dans cette étude : chargeur à effet couronne, source radioactive (Ni-63) et rayon X.

Le fluide de travail le plus utilisé pour les CPC et les MPSS est le butanol. Certains instruments utilisent l'eau ou l'isopropanol comme le fluide de travail.

La résolution temporelle a été mise à 5 min pour la plupart des instruments. Les deux UFP 3031 utilisent une résolution à 15 min.

Tableau 1 Résumé des instruments participés à l'intercomparaison

Participant	Atmo HdF	ISSeP		Airparif	LNE	TSI		Atmo NA
	Atmo NA							Addair
<b>Instrument</b>	UFP 3031	MPSS-Tropos	Nanoscan	MPSS-Palas	CPC 3788	CPC 3750	SMPS 3938	CPC Palas
<b>Gamme</b>	20-800 nm	10-800 nm	10-420 nm	7-1000 nm	2,5 nm-3 µm	7 nm-3 µm	7,5-334 nm	7 nm-5 µm
<b>Nb canaux</b>	6	71	13	128	/	/	128	/
<b>Source</b>	Chargeur à effet couronne	Ni-63	Chargeur à effet couronne	Rayon X	/	/	Rayon X	/
<b>Fluide de travail</b>	/	Butanol	Isopropanol	Butanol	Eau	Butanol	Butanol	Butanol
<b>Résolution temporelle</b>	15 min	5 min	1 min	~5 min	5 min	5 min	5 min	5 min

### 3.3. Validation des données

#### 3.3.1. Vérification des appareils

Chaque participant a assuré l'étalonnage, le contrôle de débit et le bon fonctionnement des appareils avant le démarrage de la campagne. Le MPSS Tropos (ISSeP) a été calibré avec les particules en latex de polystyrène (PSL) à 203 nm en arrivant sur site. Atmo Hauts-de-France a vérifié les débits pour les UFP 3031 avant et pendant la campagne.

#### 3.3.2. Disponibilité de mesures

La majorité des instruments ont fonctionné correctement pendant toute la campagne. Le CPC 3750 et le SMPS 3938 n'étaient pas disponibles en milieu de la campagne. Les problèmes techniques sont détaillés dans la section suivante.

	13-juin	14-juin	15-juin	16-juin	17-juin	18-juin	19-juin	20-juin	21-juin	22-juin	23-juin	24-juin	25-juin	26-juin	27-juin	28-juin	29-juin
UFP 3031 Atmo HdF	Vert																
UFP 3031 Atmo NA	Vert																
CPC Palas	Vert																
CPC 3750	Vert																
CPC 3788	Vert																
SMPS 3938	Vert																
MPSS Palas	Vert																
MPSS Tropos	Vert																
Nanoscan	Vert																

Figure 6 Disponibilité de chaque instrument pendant la campagne (vert : période de production de données ; rouge : période sans donnée)

#### 3.3.3. Problèmes rencontrés

- Un tuyau lié à la pompe principale de l'UFP 3031 d'Atmo Nouvelle-Aquitaine a été déconnecté en arrivant sur la campagne. Après intervention, l'UFP 3031 a été redémarré normalement.
- Les 3 instruments de TSI (CPC 3788, CPC 3750 et SPMS 3938) ont prélevé sur la même ligne de prélèvement avec un débit 3L/min au total. L'air d'entrée a été séché par une membrane Nafion avec une capacité de séchage 1 L/min. Ce séchage semble insuffisant pour les 3 instruments et pourrait causer un problème de condensation interne de CPC.

- Le SMPS 3938 s'est arrêté le 15 juin à 9h40 TU. La cause de cet arrêt était une saturation de butanol. Ce problème a été résolu après l'intervention sur place le 21 juin par la manipulation « Draining » (qui permet d'évacuer le butanol).
- Le CPC 3750 a arrêté l'acquisition le 16 juin à 00h20 TU à cause d'une perte de connexion réseau. Le 20 juin, la connexion réseau a été rétablie par notre informaticien et le CPC 3750 a été remis en route ce jour-là.
- Une coupure de réseau a eu lieu le 23 juin ce qui a empêché l'acquisition des données de mesure des CPC 3788, CPC 3750 et SPMS 3938 ce jour-là.

## 3.4. Méthode utilisée

### 3.4.1. Prétraitement des données

La résolution temporelle et l'échelle de temps (temps local ou temps universel (TU)) sont définies différemment d'un instrument à l'autre. Le pas de temps à 5 min a été choisi pour la plupart des instruments (sauf l'UFP 3031 : 15 min). De plus, une donnée enregistrée peut correspondre à « start time » (heure de démarrage de mesure), « middle time » (heure en milieu de mesure) et « end time » (heure de fin de mesure) selon l'instrument.

Pour faciliter et harmoniser la comparaison, toutes les données sont mises en TU et recalculées comme « end time ». En cas de comparaison avec l'UFP 3031, les données des autres instruments sont moyennées sur 15 min.

### 3.4.2. Unités de concentration

#### PNC

Pour comparer le comptage total des particules, la concentration en nombre de particules (PNC : *particle number concentration*) en unité « nombre de particule/cm<sup>3</sup> » est utilisée. Cette concentration est mesurée directement par un CPC, calculée à partir des canaux d'un MPSS et d'un UFP 3031.

Un point de vigilance sur la comparaison est à avoir du fait de domaines de mesure différents entre les appareils ayant une influence directe sur le comptage total en PUF. Le système de prélèvement et séchage pourraient aussi influencer les particules mesurées.

#### dN/dlogDp

Pour les MPSS, le nombre de canaux n'est pas identique pour tous les instruments. Le nombre de particules dans chaque canal dépend directement de l'étendue du canal. Un exemple est donné pour illustrer ce problème sur la Figure 7. La résolution du SMPS à gauche est à 64 canaux et celui à droite est à 32 canaux. Dans un premier temps, il semble que la concentration maximale mesurée dans le graphe à droite (5.05e+05 particules/cm<sup>3</sup>) soit deux fois plus élevée que celle dans le graphe à gauche (2.69e+05 particules/cm<sup>3</sup>). Mais cette différence est dû à l'étendue du canal, qui est deux fois plus large à droite que celui à gauche.

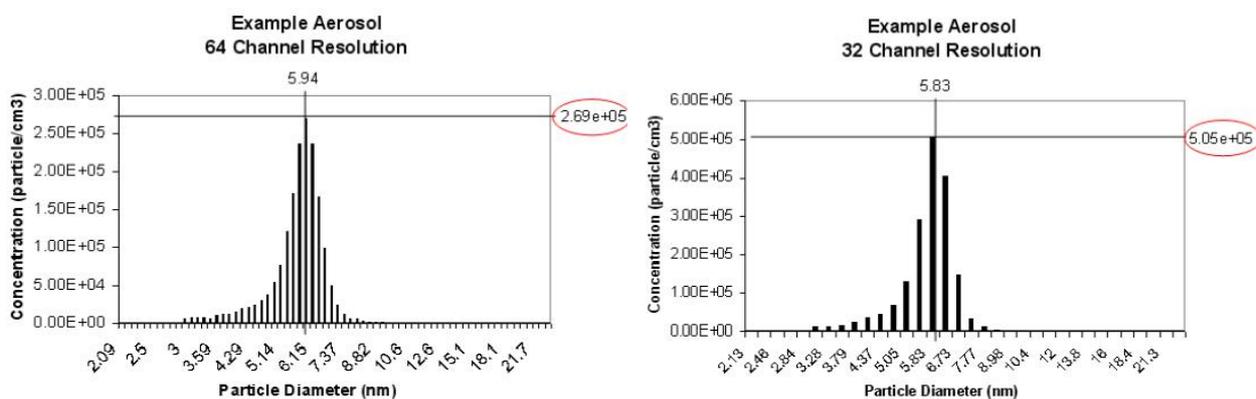


Figure 7 Concentration de particules pour la résolution de 64 canaux et de 32 canaux<sup>2</sup>

Afin d'éviter ce type de problème, la concentration **dN/dlogD<sub>p</sub>** est utilisée :

$$\frac{dN}{d\log D_p} = \frac{dN}{\log D_{p,u} - \log D_{p,l}} \quad (1)$$

Où dN est la concentration en nombre dans le canal p, D<sub>p</sub> est le diamètre médian des particules dans le canal p, D<sub>p,u</sub> est le diamètre de la valeur supérieure du canal p, D<sub>p,l</sub> est le diamètre de la valeur inférieure du canal p.

Dans ce cas, la concentration en nombre est divisée par la largeur du canal, donc cette concentration **dN/dlogD<sub>p</sub>** est indépendante de la résolution du canal.

### □ dN/N/dlogD<sub>p</sub>

Néanmoins, les MPSS présentent différentes gammes de mesure (voir le Tableau 1). Afin de les comparer dans la même gamme de taille, une concentration normalisée sur « N » a été introduit.

Ici, le **N** est le nombre total de particules entre 20 et 200 nm mesuré par chaque instrument.

$$\frac{dN/N}{d\log D_p} = \frac{dN/N}{\log D_{p,u} - \log D_{p,l}} \quad (2)$$

Dans ce cas-là, cette concentration « **dN/N/dlogD<sub>p</sub>** » représente la concentration « dN/dlogD<sub>p</sub> » normalisée sur la même gamme de mesure (20-200 nm).

### 3.4.3. Corrélation

La régression orthogonale a été utilisée dans cette étude pour comparer la corrélation entre différents instruments.

La variable X et la variable Y représentent les données mesurées par deux instruments différents :

$$Y = a + b \cdot X \quad (3)$$

Où **a** est l'ordonnée à l'origine de la droite de régression orthogonale, **b** est le coefficient directeur de la droite de la régression orthogonale, et **r<sup>2</sup>** est le coefficient de détermination.

<sup>2</sup> [https://www.tsi.com/getmedia/1621329b-f410-4dce-992b-e21e1584481a/PR-001-RevA\\_Aerosol-Statistics-AppNote?ext=.pdf](https://www.tsi.com/getmedia/1621329b-f410-4dce-992b-e21e1584481a/PR-001-RevA_Aerosol-Statistics-AppNote?ext=.pdf)

## Evaluation des résultats :

A l'heure actuelle, il n'existe pas de valeur réglementaire concernant la concentration en nombre ou la distribution en taille. Dans cette étude, nous proposons un code couleur pour évaluer la corrélation entre appareils. Ce type d'évaluation a été proposé dans l'exercice d'intercomparaison PUF précédent (Le Bihan, Dalle, et Meunier 2014).

Tableau 2 Proposition d'un code couleur pour évaluer des résultats

	<b>a</b> (p.cm <sup>-3</sup> ) par canal (pour les multicanaux)	<b>a</b> (p.cm <sup>-3</sup> ) concentration totale	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
Vert	[-50 à +50]	[-250 à +250]	[0.85-1.15]	≥0.90
Orange	[-100 à -50) ou (+50 à +100]	[-500 à -250) ou (+250 à +500]	[0.70-0.85) ou (0.15- 1.30]	[0.75-0.90)
Rouge	<-100 ou > +100	<-500 ou > +500	<0.70 ou >1.30	<0.75

## 4. Résultats de l'étude

### 4.1. Concentration totale en nombre

Dans un premier temps, la série temporelle de la concentration totale en nombre a été comparée de façon globale pour tous les instruments. Ensuite les corrélations entre instruments sont étudiées au sein de la même technologie : les CPC, les UFP 3031 et les MPSS. Ici la concentration totale en nombre de particules (p/cm<sup>3</sup>) est mesurée directement par les CPC. Pour les UFP 3031 et les MPSS, cette concentration est recalculée à partir des particules mesurées dans chaque canal.

#### 4.1.1. Globale

Le Tableau 3 et le Tableau 4 résument l'analyse statistique pendant la campagne d'intercomparaison à différente résolution temporelle : 5 min pour les CPC et les MPSS et 15 min pour tous les instruments. La concentration moyenne et son écart type, la valeur médiane/maximum/minimum, le nombre de mesures valides et le taux de fonctionnement sont présentés.

Le taux de fonctionnement est satisfaisant pour la majorité des instruments (93-100%), sauf pour le CPC 3750 et le SMPS 3938 (55-66%), qui sont non disponibles à cause de problème technique au milieu de la campagne (voir la section 3.3.3).

La statistique à 5 min et 15 min ne montrent pas une différence significative pour les CPC et les MPSS.

Pour être homogène avec les UFP 3031, la statistique à 15 min est discutée dans cette section.

La concentration moyenne pendant la campagne varie entre 5710 – 11937 p/cm<sup>3</sup> : plus élevée pour les CPC et plus faible pour les MPSS et les UFP 3031. Les écarts types sont entre 2900 – 6659 p/cm<sup>3</sup>, avec le CPC 3788 qui

donne la valeur la plus élevée. En général, la médiane est systématiquement inférieure à la moyenne avec un écart compris entre 14 et 23% selon les appareils.

La concentration maximum est mesurée par le CPC 3788 (53 898 p/cm<sup>3</sup>). Par contre, les UFP 3031 et le SMPS 3938 mesurent moins de 30 000 p/cm<sup>3</sup> comme maximum.

La valeur minimum est entre 892-2770 p/cm<sup>3</sup>.

Le nombre de mesures valides est lié au temps de fonctionnement et à la résolution temporelle définie.

*Tableau 3 Analyse statistique pour tous les instruments durant la campagne (13-29 juin 2019) : résolution à 5 min*

Instrument	CPC 3750	CPC Palas	CPC 3788	MPSS-Tropos	MPSS-Palas	SMPS 3938	Nanoscan
<b>Gamme</b>	7 nm-3 µm	7 nm-5 µm	2,5 nm-3 µm	10-800 nm	7-1000 nm	7,5 -334 nm	10-420 nm
<b>Moyenne (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	10672	8338	11940	8714	7639	5712	6316
<b>Ecart-type (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	5541	4218	6903	4684	4387	2981	3961
<b>Médiane (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	8655	7108	9818	7385	6494	4730	5267
<b>Max (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	48258	37148	72880	40812	43881	26200	41100
<b>Min (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	2566	1171	1980	1614	1186	1300	1073
<b>Nombre valide</b>	3046	4633	4296	4633	4633	2531	4633
<b>Taux de fonctionnement</b>	66%	100%	93%	100%	100%	55%	100%

*Tableau 4 Analyse statistique pour tous les instruments durant la campagne (13-29 juin 2019) : résolution à 15 min*

Instrument	UFP 3031 HdF	UFP 3031 NA	CPC 3750	CPC Palas	CPC 3788	MPSS-Tropos	MPSS-Palas	SMPS 3938	Nanoscan
<b>Gamme</b>	20-800 nm	20-800 nm	7 nm-3 µm	7 nm-5 µm	2,5 nm-3 µm	10-800 nm	7-1000 nm	7,5 -334 nm	10-420 nm
<b>Moyenne (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	5985	6621	10662	8338	11937	8714	7638	5710	6315
<b>Ecart-type (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	3673	4023	5441	4221	6659	4617	4234	2900	3909
<b>Médiane (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	5222	5705	8608	7139	9834	7416	6556	4730	5286
<b>Max (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	29617	26695	42571	32191	53898	32019	30212	19967	29466
<b>Min (p/cm<sup>-3</sup>)</b>	892	898	2770	1421	2012	1670	1340	1420	1119
<b>Nombre valide</b>	1544	1544	1017	1544	1442	1544	1544	845	1544
<b>Taux de fonctionnement</b>	100%	100%	66%	100%	93%	100%	100%	55%	100%

Les séries temporelles de tous les instruments sont présentées dans la Figure 8. En général, leurs variations temporelles sont assez similaires, mais il est difficile de distinguer le comportement de chaque instrument avec ce graphique. Leurs corrélations linéaires seront discutées dans les sections suivantes.

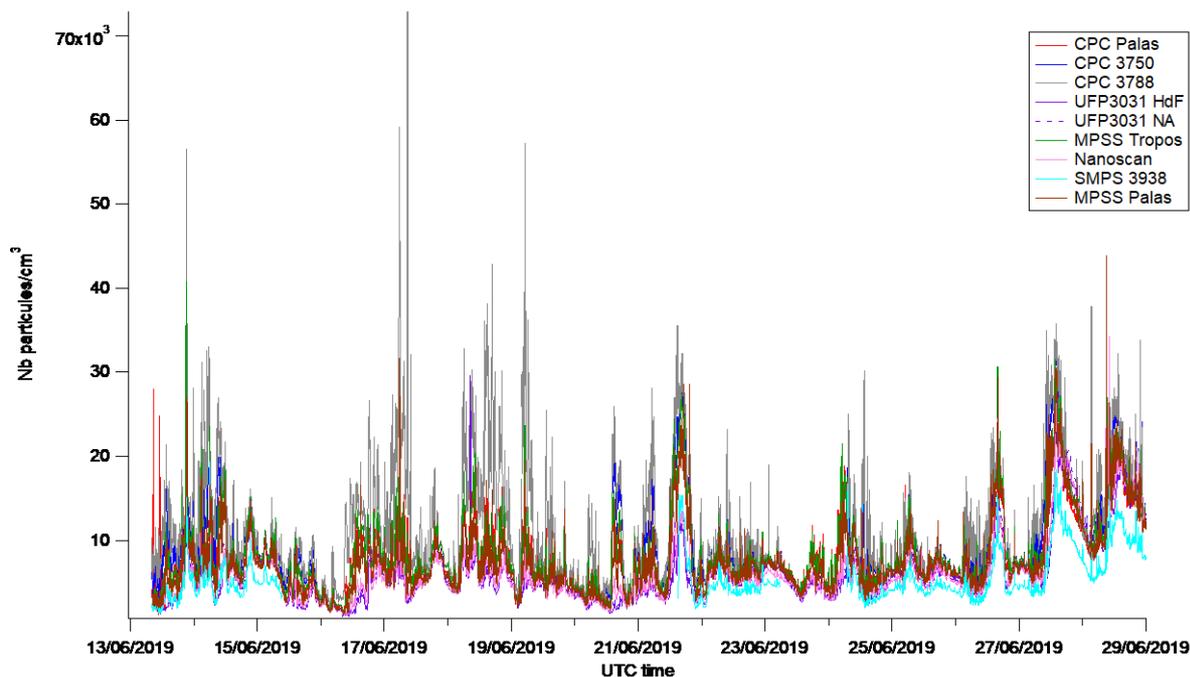


Figure 8 Séries temporelles de tous les instruments pendant la campagne d'intercomparaison

Au début de la campagne, les écarts de concentration sont assez importants du 13/06 au 14/06 et sont minimums de 20h le 14/06 à 12h le 15/06 (sauf le SMPS 3938). Cette différence peut être liée aux concentrations mesurées, qui sont plus importantes au début et moins élevées pour les jours suivants.

### Début de la campagne

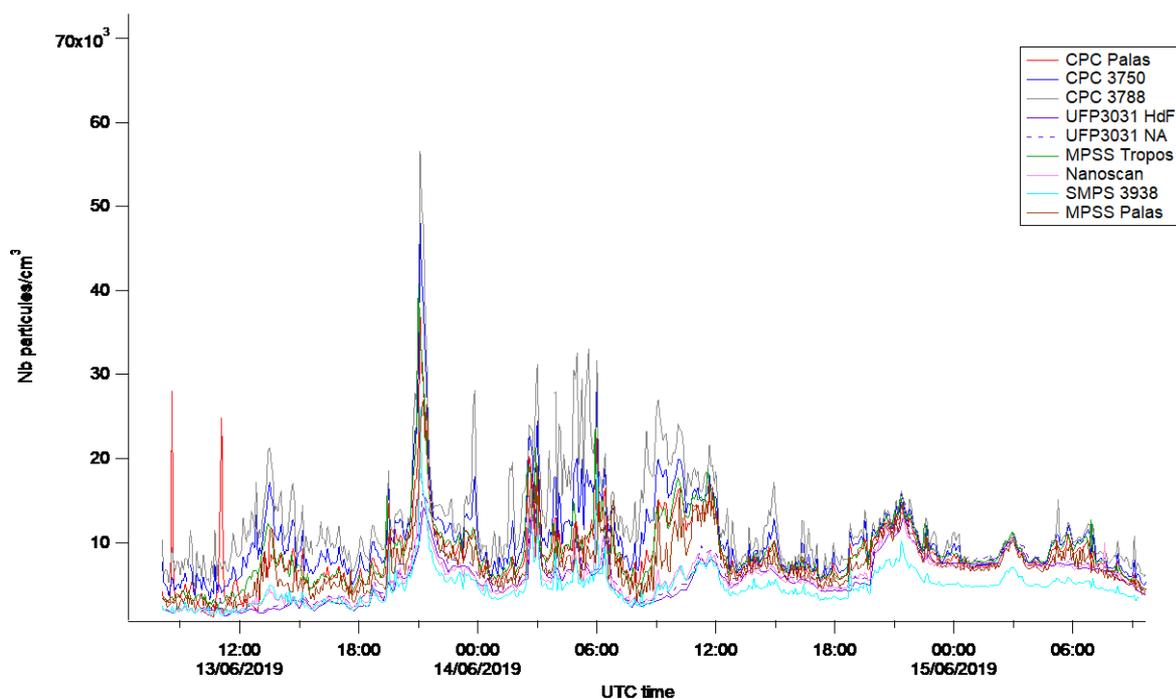
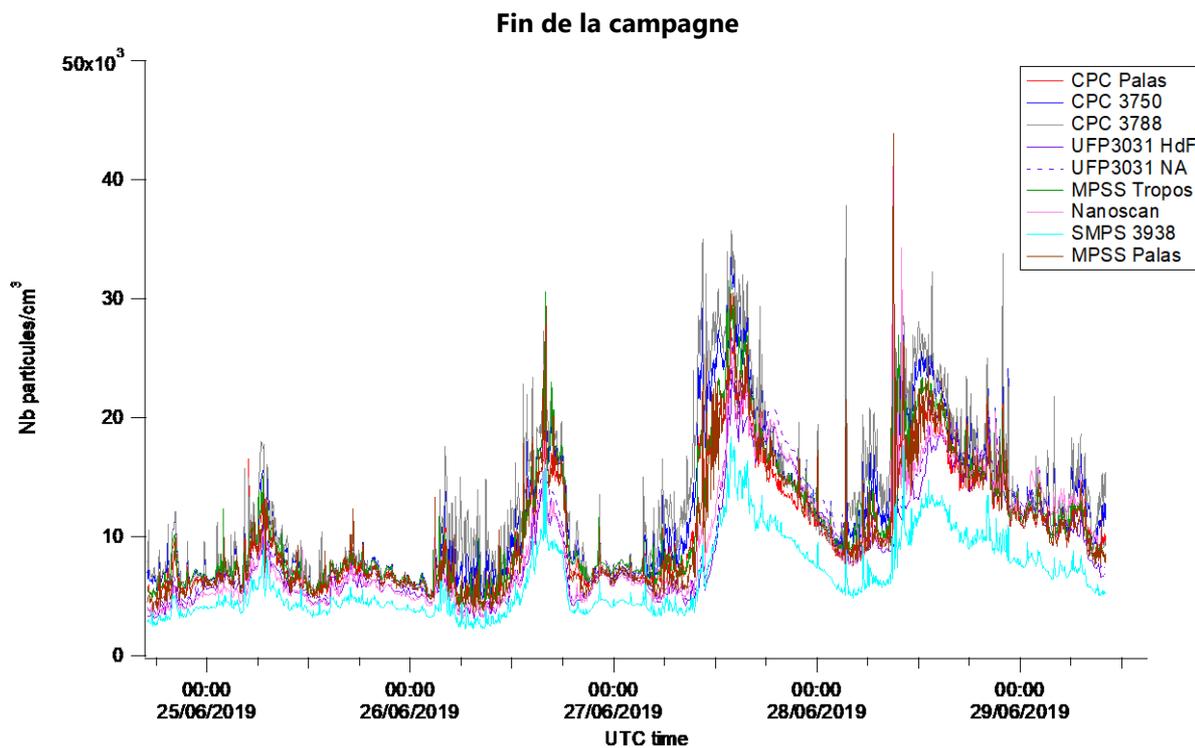


Figure 9 Séries temporelles de tous les instruments au début de la campagne

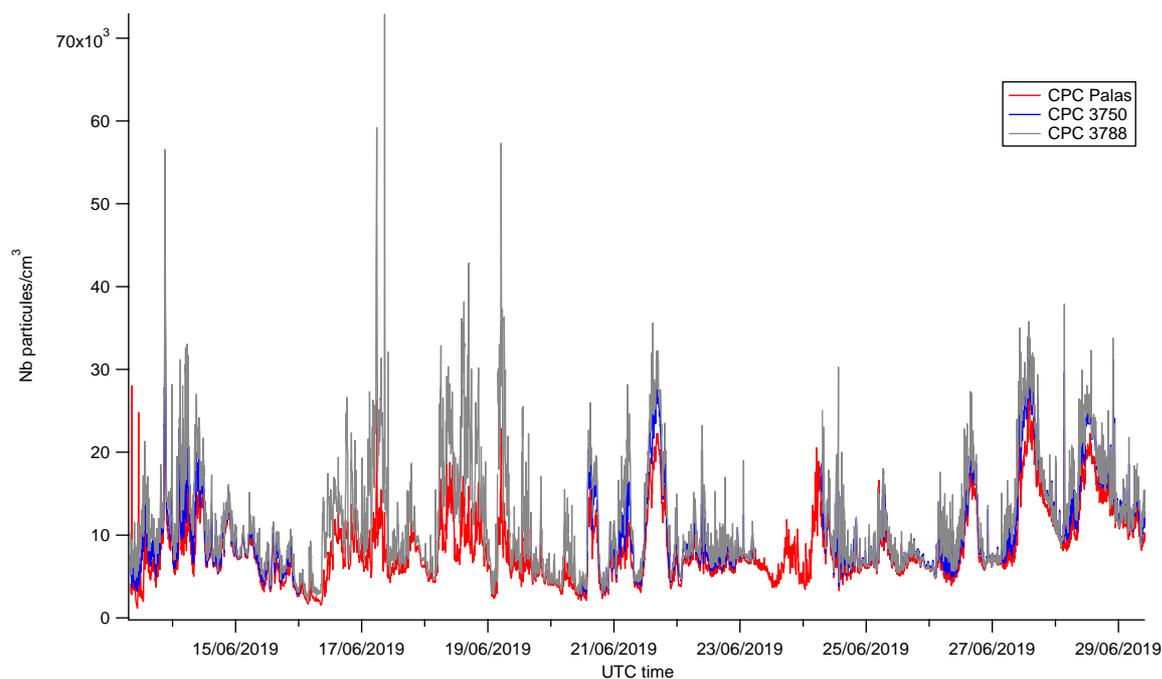
A la fin de la campagne, tous les instruments montrent un profil très similaire. La concentration totale du SMPS 3938 est toujours plus faible par rapport aux autres, probablement en lien avec à sa gamme de mesure plus petite (7-330 nm).



#### 4.1.2. CPC

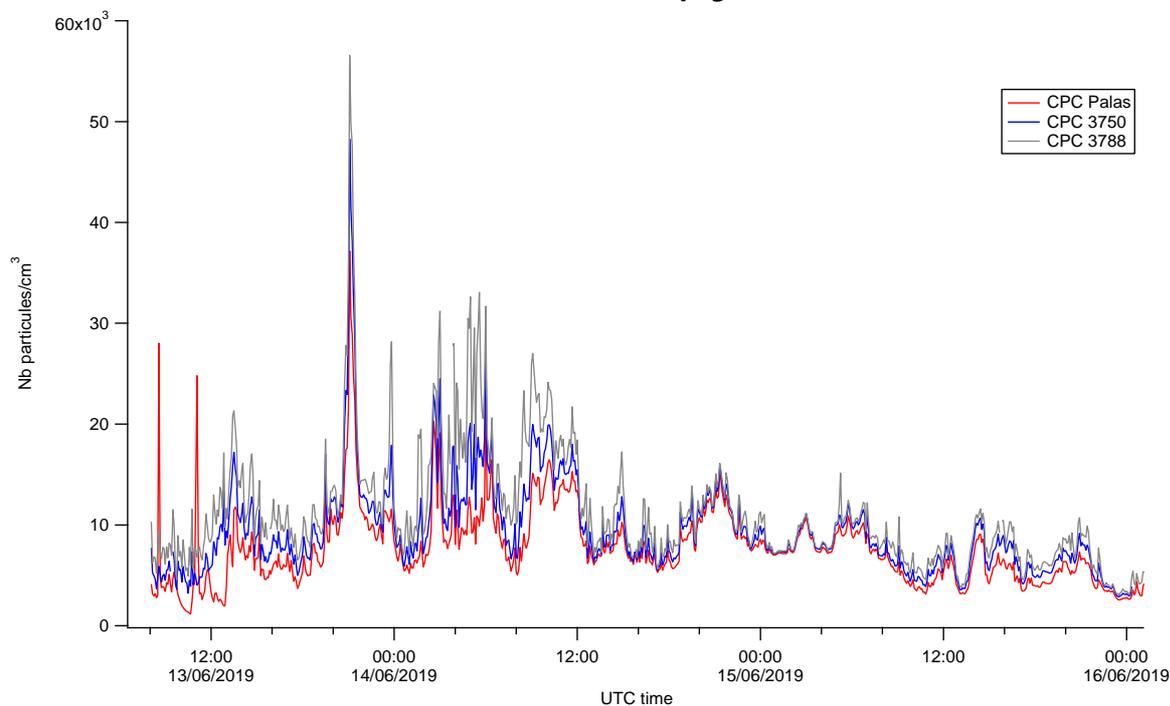
Dans cette partie, la série temporelle et la corrélation entre 3 CPC sont discutés. Le CPC 3750 n'a pas fonctionné du 16/06 au 20/06 (voir la section 3.3).

Pendant cette campagne, les 3 CPC présentent un profil temporel très similaire (Figure 11).



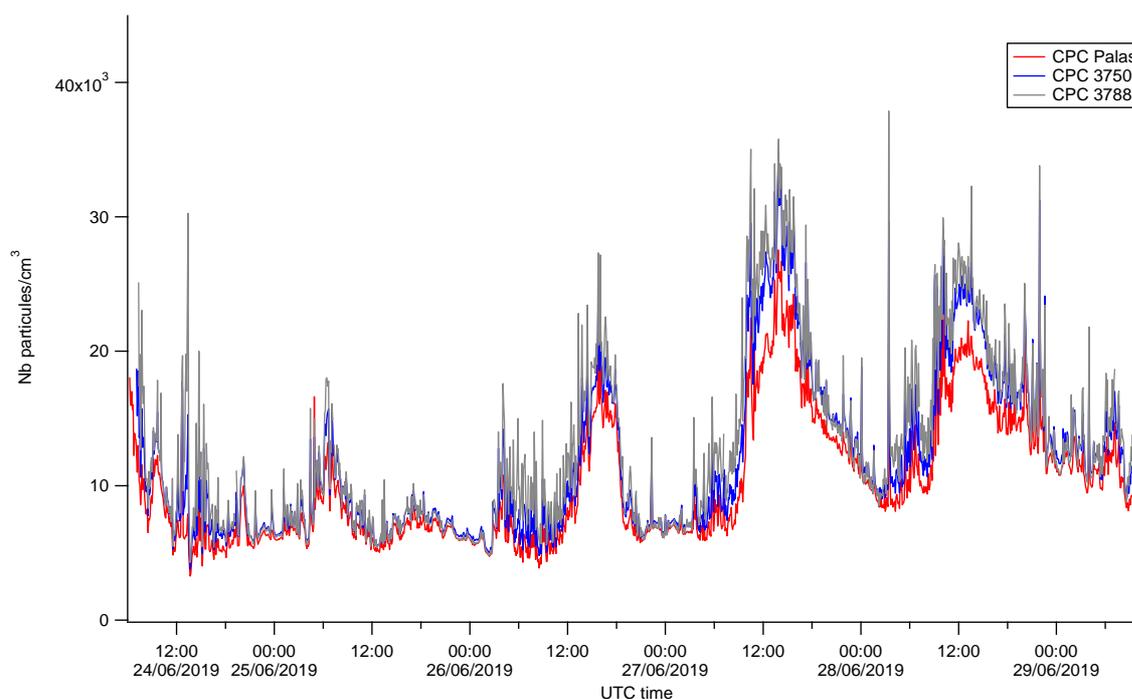
Au début de la campagne, le CPC Palas a mesuré 2 pics importants le 13/06 avant 12h, qui n'ont pas été observés par les autres CPC. En général, la concentration totale mesurée par le CPC 3788 est la plus haute parmi les 3 CPC, suivi par le CPC 3750 et le CPC Palas en dernier. Les écarts entre eux ne sont pas identiques au cours du temps et sont très faibles entre 20h 14/06 et 12h 15/06.

### Début de la campagne



A la fin de la campagne, le CPC 3788 et le CPC 3750 montrent un niveau très proche, et le CPC Palas mesure légèrement moins que les autres, notamment pour les trois derniers pics importants.

### Fin de la campagne



La corrélation de la concentration totale entre 3 CPC est montrée dans la Figure 14 et le Tableau 5. Le CPC 3750 montre une bonne corrélation avec le CPC 3788 ( $r^2=0.94$ ) et le CPC Palas ( $r^2=0.95$ ). Le CPC 3788 mesure environ 13% plus de particules que le CPC 3750 ; et le CPC 3750 compte environ 24 % plus de particules que le CPC Palas. Cependant, la corrélation entre le CPC 3788 et le CPC Palas n'est pas très forte ( $r^2=0.74$ ) et la concentration totale mesurée par le CPC 3788 est environ 74% plus que celle du CPC Palas.

Le code couleur dans le Tableau 5 indique que le CPC 3750 a une corrélation assez bonne avec les deux autres CPC. Mais le CPC 3788 et le CPC Palas présentent une différence significative entre eux.

Le CPC 3788 à eau peut mesurer les particules à partir de 2,5 nm et les deux CPC à butanol commencent compter à partir de 7 nm. Liu et al. (2006) ont trouvé qu'un CPC à eau peut détecter des particules aussi petites que ~2,4 nm et a une efficacité de détection plus élevée qu'un CPC à butanol pour les particules de sel plus petites que 6 nm. Cela pourrait expliquer la différence entre le CPC 3788 et les CPC à butanol.

Le CPC 3750 et le CPC Palas utilisent le butanol comme fluide de travail et ont la même gamme de mesure. Une des raisons qui pourrait expliquer la différence de la concentration mesurée est qu'ils utilisent des lignes et têtes de prélèvement différentes. L'influence de la ligne de prélèvement a été évaluée dans le rapport d'intercomparaison de deux UFP 3031 par Atmo Hauts-de-France (Atmo HdF 2018), elle peut donner jusqu'à 20% d'écart sur la concentration totale entre deux UFP 3031.

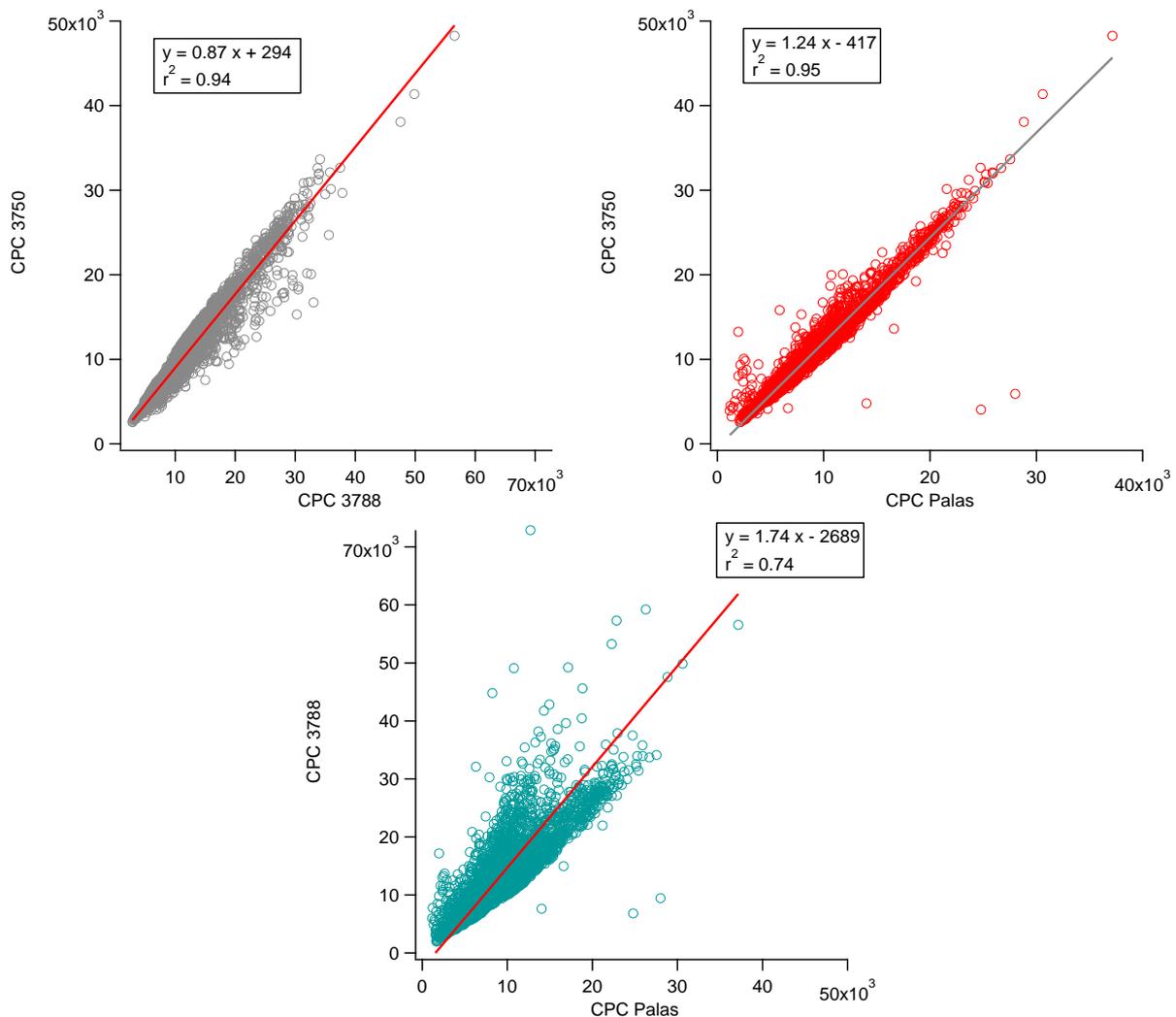


Figure 14 Corrélation de la série temporelle entre 3 CPC

Tableau 5 Corrélation entre 3 CPC

CPC 3750	a	b	r <sup>2</sup>
CPC 3788	294	0.87	0.94
CPC Palas	-417	1.24	0.95

CPC 3788	a	b	r <sup>2</sup>
CPC Palas	-2689	1.74	0.74

### 4.1.3. UFP 3031

La concentration totale de l'UFP 3031 est la somme des particules mesurées dans les 6 canaux. Le profil temporel des deux UFP 3031 est très similaire pendant toute la campagne (Figure 15).

La plupart du temps, leur concentration totale est plus basse que les CPC à butanol.

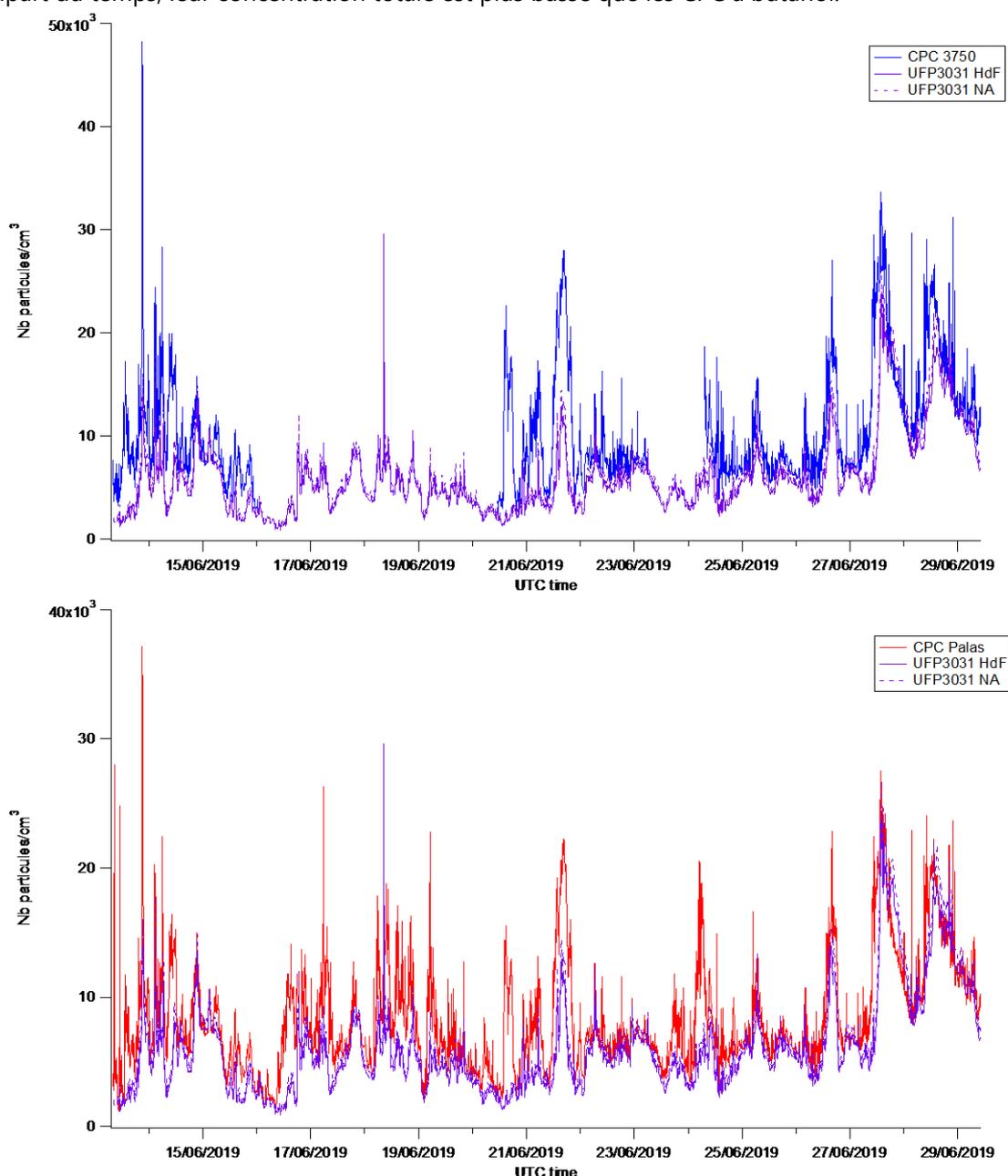
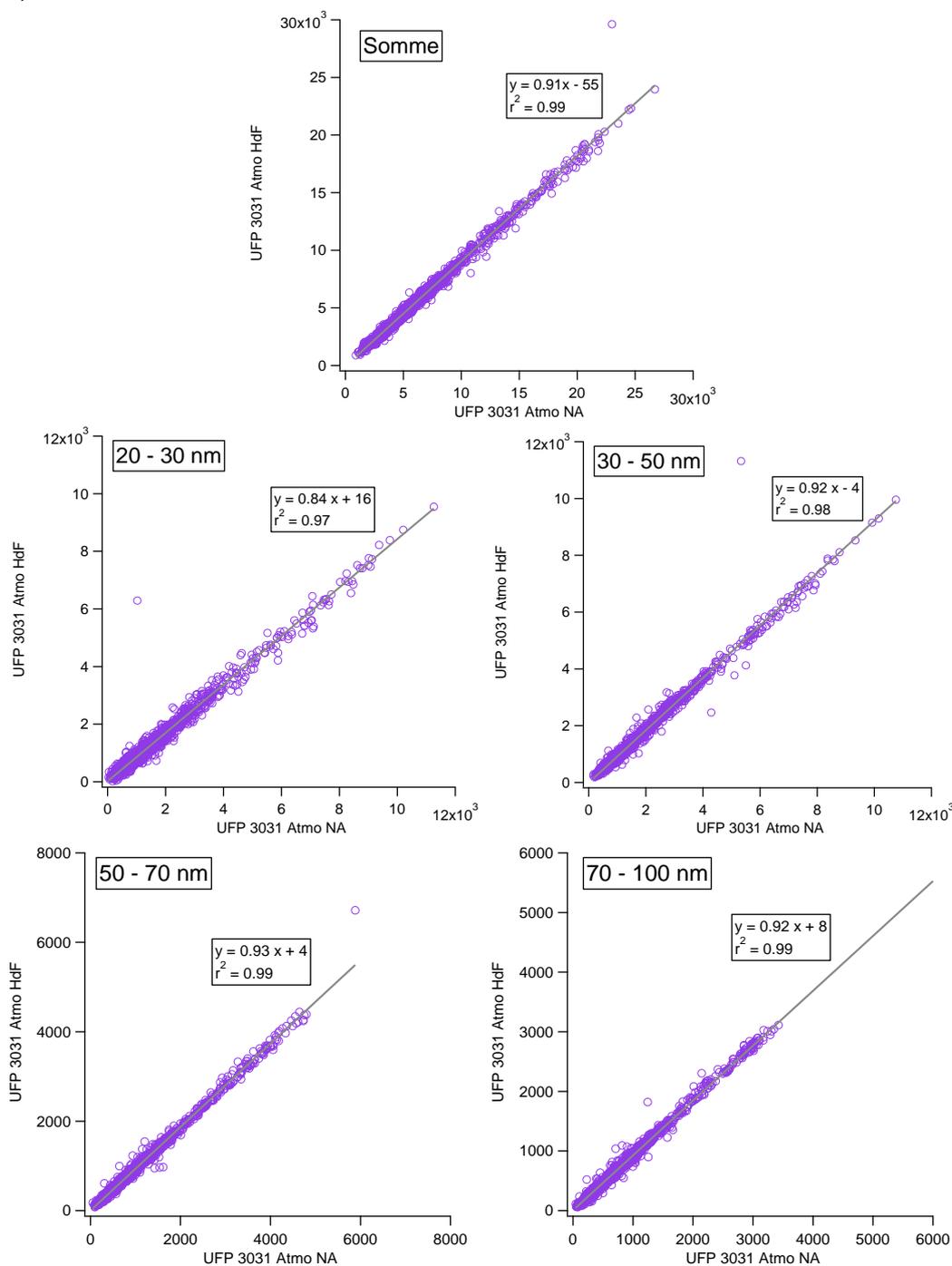


Figure 15 Série temporelle des UFP 3031 comparé avec les CPC

La comparaison de deux UFP 3031 montre une corrélation excellente pour leur concentration totale et pour les six classes de taille séparément ( $r^2 = 0.96 - 0.99$ ).

Pour la somme totale, l'UFP 3031 d'Atmo Nouvelle-Aquitaine mesure environ 9% plus que celle d'Atmo HdF. Cette différence est plus importante (16%) pour les particules plus petites (20-30 nm) et entre 7-10% pour les autres canaux. Plus de détails sur l'intercomparaison de l'UFP 3031 se trouvent sur les rapports de LCSQA (2014, 2015, 2016).



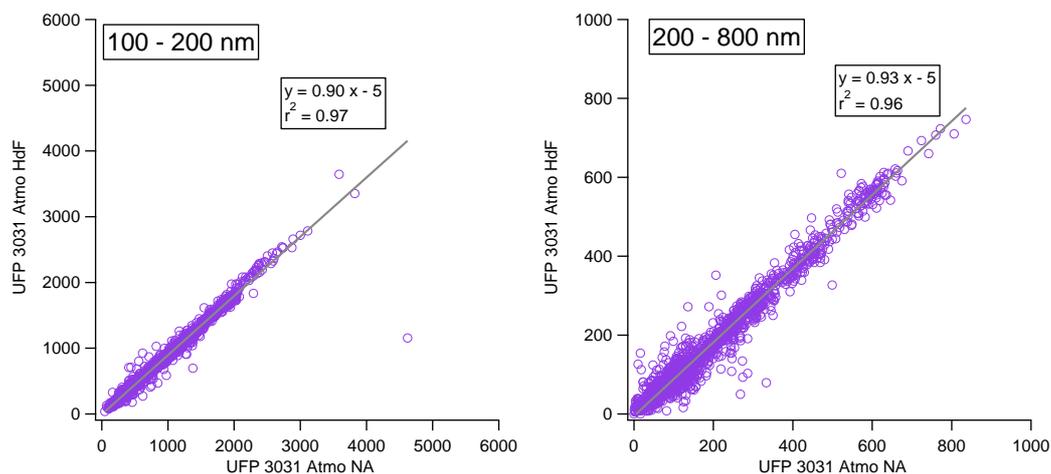


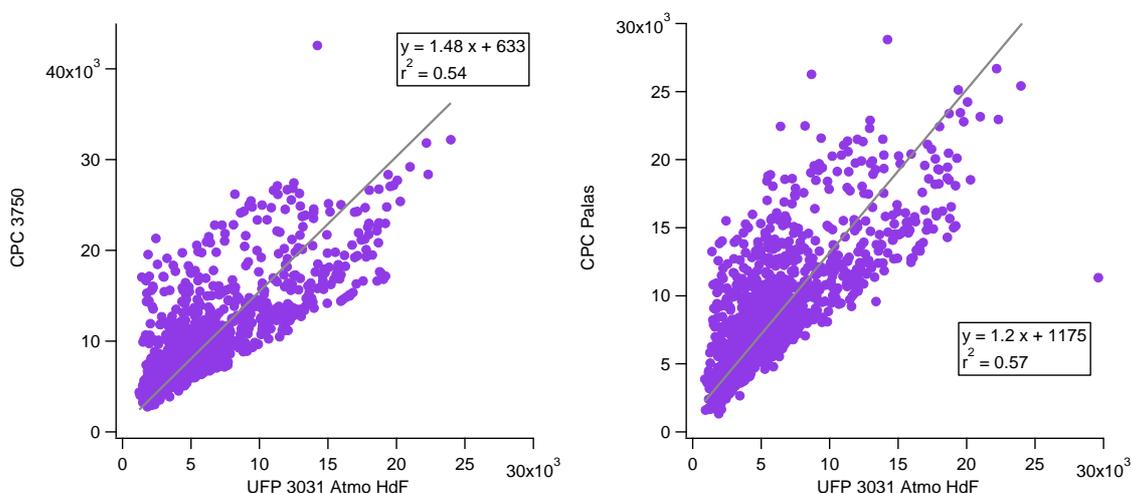
Figure 16 Corrélation de la somme totale et de chaque canal entre 2 UFP 3031

Le code couleur dans le Tableau 6 (vert) indique une très bonne corrélation entre deux UFP 3031 pour la concentration totale et pour les six classes de taille séparément.

Tableau 6 Corrélation entre deux UFP 3031

UFP 3031 Atmo HdF (Y) & Atmo NA (X)	a	b	r <sup>2</sup>
Concentration totale	-55	0.91	0.99
20-30 nm	16	0.84	0.97
30-50 nm	-4	0.92	0.98
50-70 nm	4	0.93	0.99
70-100 nm	8	0.92	0.99
100-200 nm	-5	0.90	0.97
200-800 nm	-5	0.93	0.96

Bien que les UFP 3031 se corrélaient très bien entre eux, ils ne montrent pas les mêmes résultats que les CPC à butanol. Les coefficients de corrélation sont assez faibles ( $r^2=0.54-0.58$ ). L'ordonnée à l'origine de la droite est également très grande (633-1175). Cela pourrait être expliqué par : i) les particules en dessous de 20 nm ne sont pas prises en compte par l'UFP 3031 ; 2) un biais méthodologique.



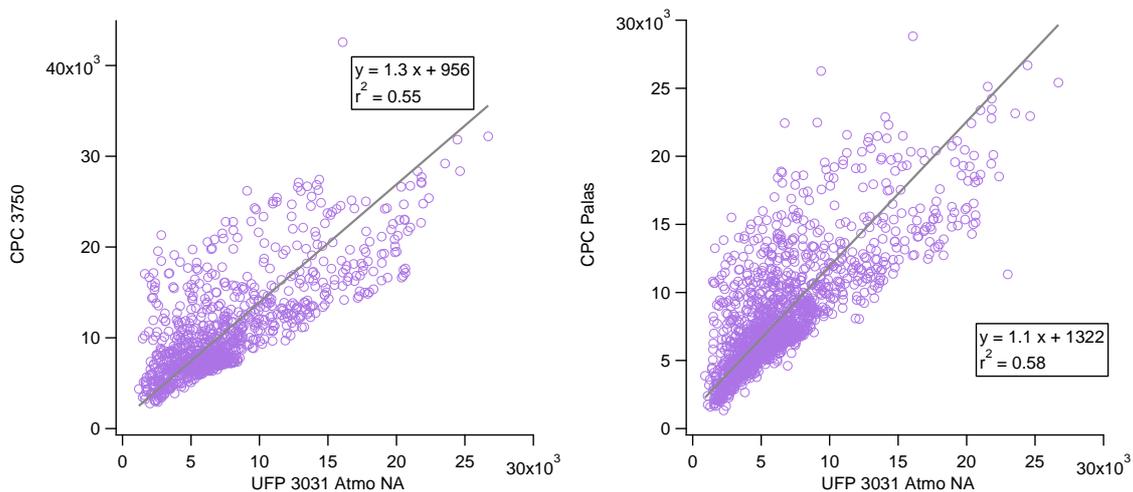


Figure 17 Corrélation entre les'UFP 3031 et les CPC

Le code couleur dans le Tableau 7 (rouge dominant) montre que la concentration totale mesurée par les UFP 3031 n'est pas très cohérente avec celle mesuré par les CPC à butanol.

Tableau 7 Corrélation entre les CPC butanol et les UFP 3031

<b>CPC 3750</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
UFP 3031 Atmo HdF	1322	1.1	0.58
UFP 3031 Atmo NA	956	1.3	0.55

<b>CPC Palas</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
UFP 3031 Atmo HdF	1175	1.2	0.57
UFP 3031 Atmo NA	633	1.48	0.54

#### 4.1.4. MPSS

Les séries temporelles des MPSS et du CPC 3750 sont présentées dans la Figure 18. Leurs profils sont très comparables, mais la concentration totale du SMPS 3938 est toujours en dessous des autres MPSS (déjà discuté dans la section 4.1.1).

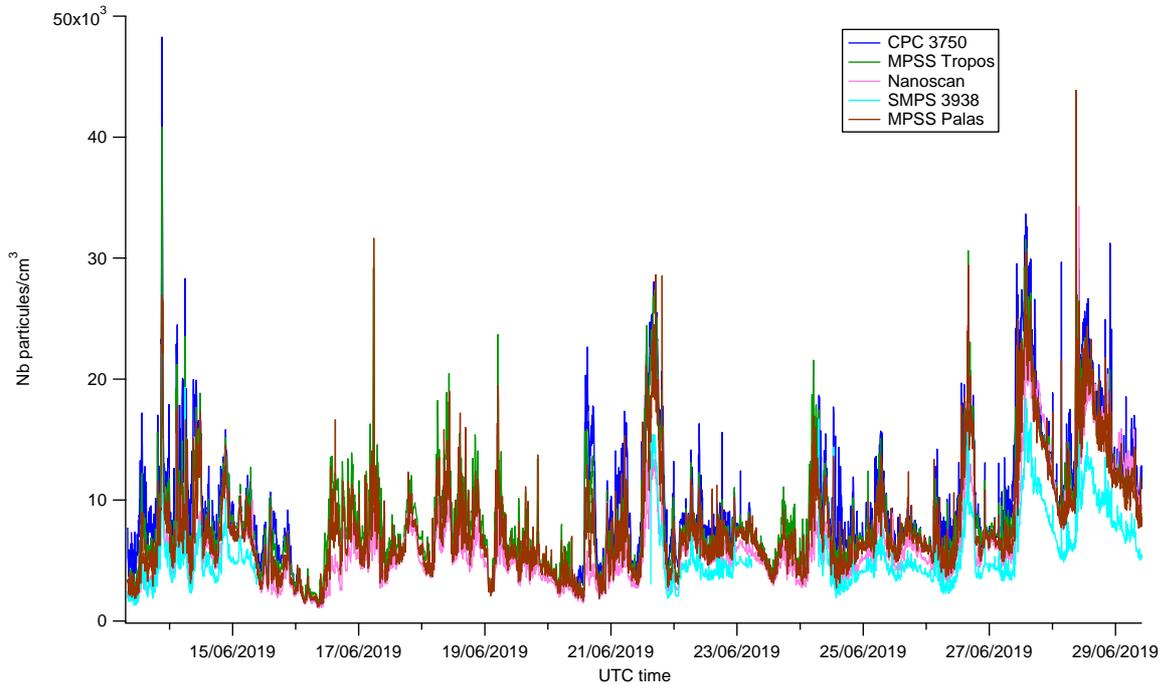
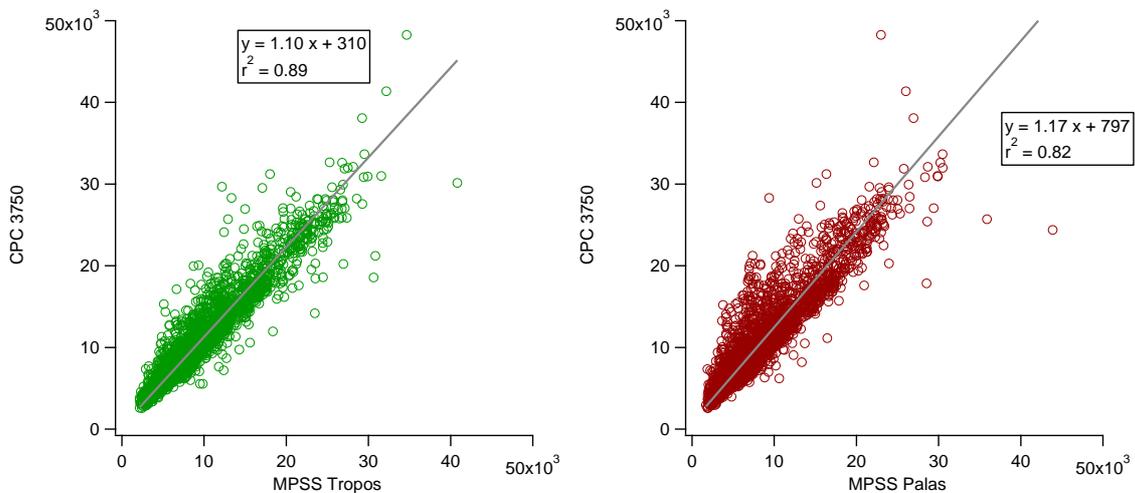


Figure 18 Série temporelle du CPC 3750 et des MPSS

Les corrélations sur la concentration totale mesurée par le CPC 3750 et les MPSS sont présentées dans la Figure 19.

Le MPSS Tropos et le MPSS Palas montrent une bonne corrélation avec le CPC 3750 (pente=1.10-1.17 et  $r^2=0.82-0.89$ ). La corrélation entre le CPC 3750 et le SMPS 3938 est bonne ( $r^2=0.82$ ), mais la concentration totale mesurée par le CPC 3750 est presque 2 fois plus élevée que celle du SMPS 3938. Le Nanoscan ne montre pas une bonne corrélation avec le CPC 3750 ( $r^2=0.62$ ).



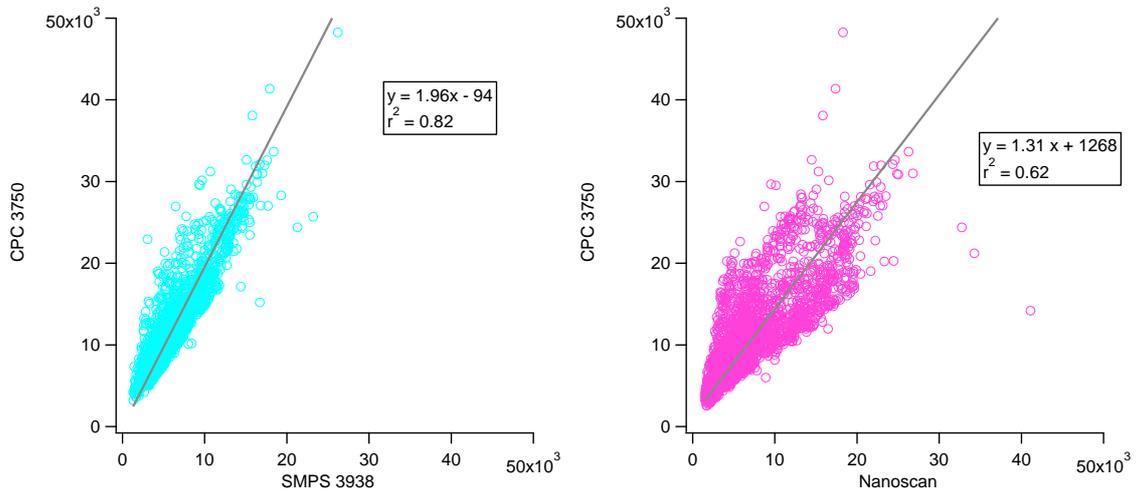


Figure 19 Corrélation entre le CPC 3750 et les MPSS

Le même type de comparaison a été effectué avec le CPC Palas (

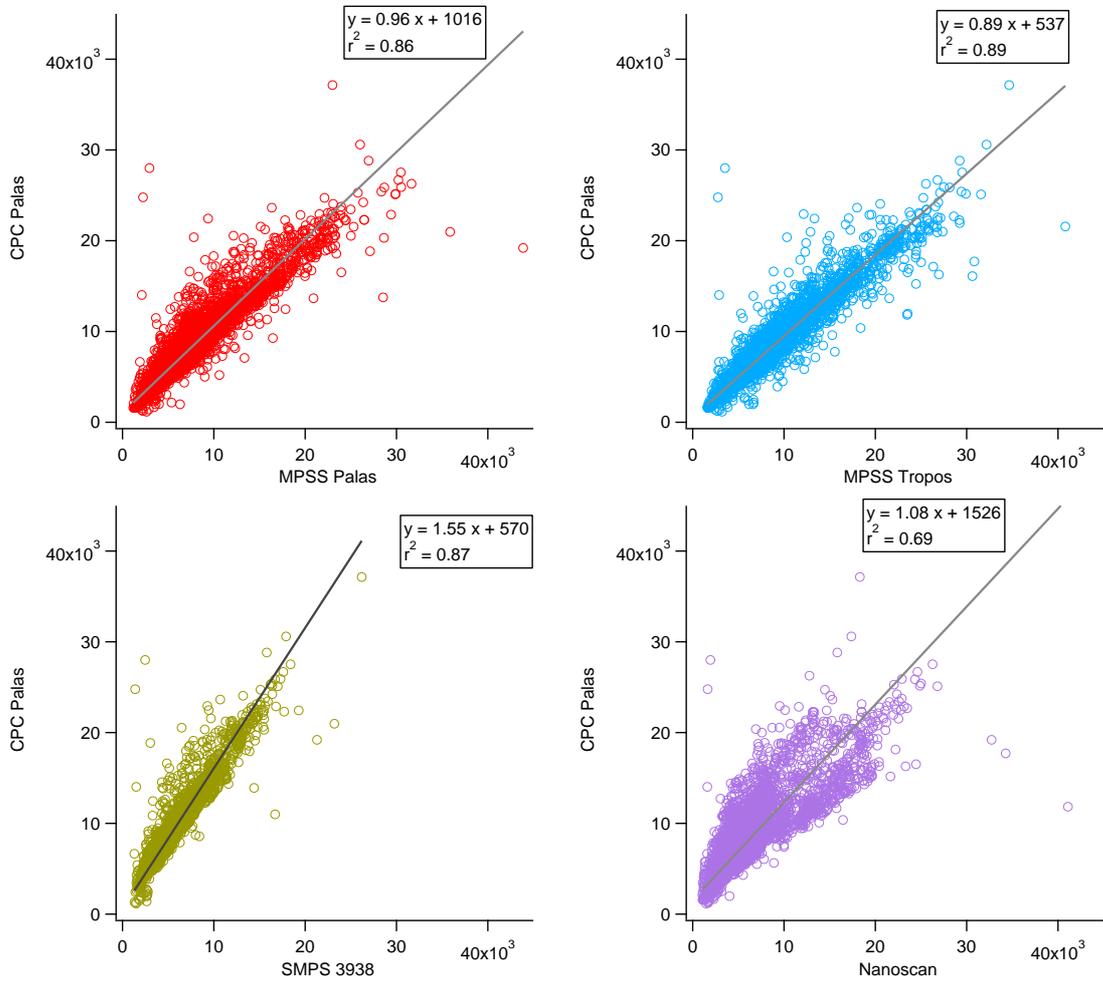


Figure 20), qui donne des résultats similaires au CPC 3750, mais avec une pente 14-40% plus faible qu'avec le CPC 3750.

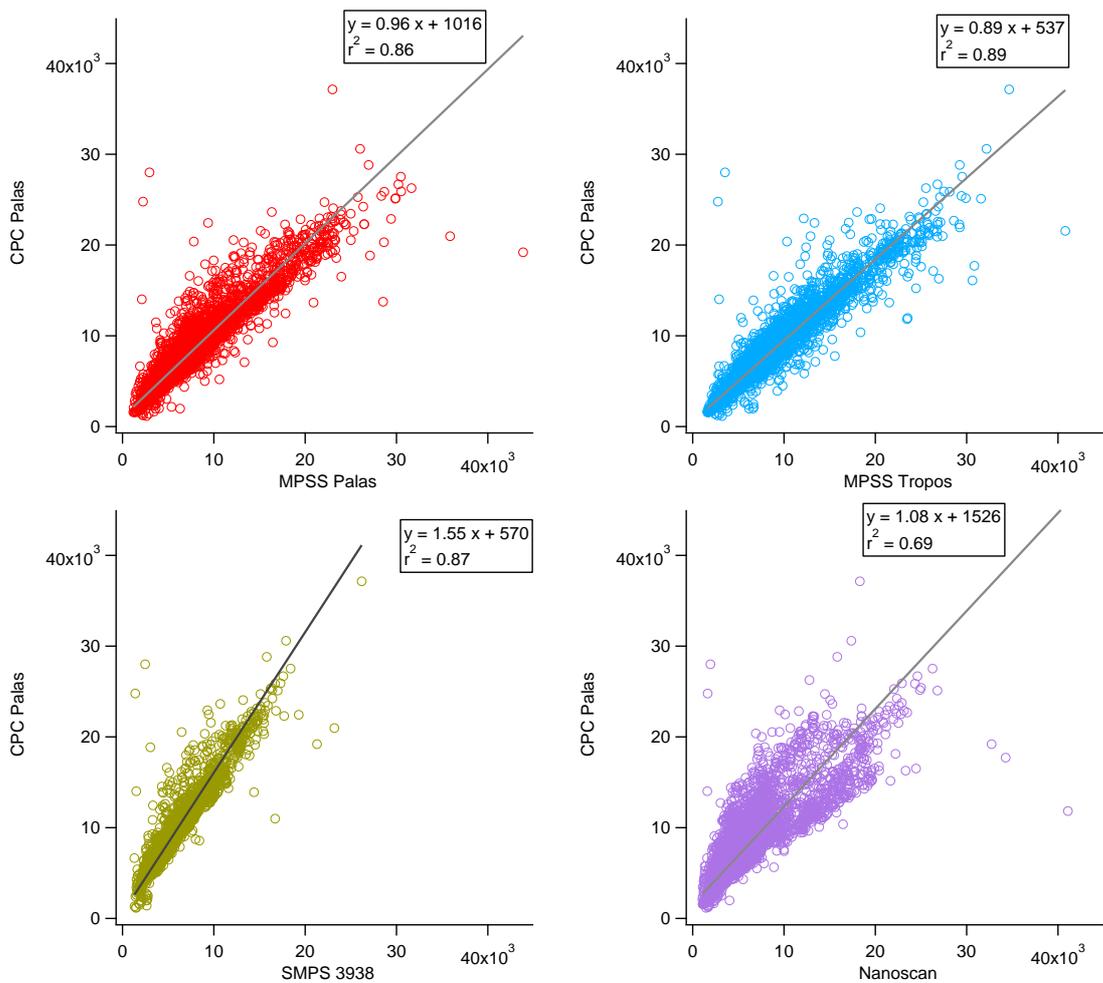


Figure 20 Corrélation entre le CPC Palas et les MPSS

La code couleur dans le Tableau 8 montre que le MPSS Tropos a une meilleure corrélation avec le CPC 3750. Les MPSS présentent une ordonnée à l'origine de la droite très importante (> 500) quand ils sont comparés avec le CPC Palas.

Tableau 8 Corrélation entre les CPC butanol et les MPSS

<b>CPC 3750</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
MPSS Palas	797	1.17	0.82
MPSS Tropos	310	1.10	0.89
SMPS 3938	-94	1.96	0.82
Nanoscan	1268	1.31	0.62

<b>CPC Palas</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
MPSS Palas	1016	0.96	0.86
MPSS Tropos	537	0.89	0.89
SMPS 3938	570	1.55	0.87
Nanoscan	1526	1.08	0.69

Les corrélations sur la mesure de la concentration totale en nombre entre les MPSS restent bonnes ( $R^2 = 0.73-0.90$ ). Mais la pente de corrélation est très variable (entre 0.60 et 1.78). Le MPSS Tropos et le MPSS Palas montrent la meilleure corrélation avec une pente = 1.07 et  $r^2 = 0.83$ , malgré l'ordonnée à l'origine de la droite supérieure à 500. Le SMSP TSI et le MPSS Palas présentent un bon  $r^2$  (0.90), mais avec une pente très différente (0.6).

Les écarts peuvent s'expliquer par leur différence de domaine de mesure et/ou par la technologie utilisée (Tableau 9 et Annexe 3).

Tableau 9 Corrélation entre les MPSS

<b>MPSS Tropos</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
SMPS TSI	-230	1.78	0.84
MPSS Palas	506	1.07	0.83
Nanoscan	1034	1.21	0.73

<b>SMPS TSI</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
MPSS Palas	288	0.60	0.90
Nanoscan	784	0.63	0.81

<b>MPSS Palas</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>r<sup>2</sup></b>
Nanoscan	547	1.12	0.77

- Pour la concentration totale, tous les instruments montrent des séries temporelles comparables entre elles. En général, les CPC mesurent plus de particules que les MPSS et les UFP 3031.
- Parmi les CPC, le CPC à eau mesure plus de particules que les CPC à butanol. Les deux CPC à butanol ont une différence d'environ 20% sur la concentration totale.
- Les deux UFP 3031 présentent une corrélation excellente entre eux, mais leur concentration totale est sous-estimée par rapport aux CPC à butanol.
- Le nombre total mesuré par les MPSS est variable, certains instruments permettent de mesurer une concentration totale similaire aux CPC à butanol.

## 4.2. Distribution en taille

Les MPSS et l'UFP 3031 permettent de fournir des informations sur la distribution en taille des particules. Chaque instrument présente les caractéristiques différentes : gamme de mesure, nombre de canaux, résolution temporelle, sources de chargeur (radioactive, rayon X, ou effet couronne) ...

Dans cette section, nous comparons leur distribution en taille avec différentes unités de concentration et leur écart type en début, milieu et fin de campagne. La définition de ces concentrations utilisées est présentée dans la section 3.4.2.

### 4.2.1. Concentration $dN/d\text{Log}D_p$

Sur les Figures 21-23, l'axe Y est la concentration ( $dN/d\text{Log}D_p$ ) par centimètre cube, l'axe X est le diamètre de particule (nm) en échelle logarithmique. Pour rappel, la concentration ( $dN/d\text{Log}D_p$ ) permet de négliger l'influence du nombre et de l'étendue des canaux. Cependant, le nombre de canaux de l'UFP 3031 (6 canaux) et du Nanoscan (13 canaux) est nettement moins important que les autres MPSS (71-128 canaux), ce qui donne une distribution en taille moins fine en termes de résolution.

Les 3 graphes présentent la distribution en taille moyenne sur 24h au début/au milieu/à la fin de la campagne.

Au début de la campagne (14-15 juin 2019), tous les instruments montrent le maximum du pic à 50 nm (Figure 21). Le MPSS Tropos présente une concentration plus élevée ( $\sim 12\,000\text{ p/cm}^3$ ). Le MPSS Palas, le Nanoscan et l'UFP 3031 affichent un niveau similaire ( $\sim 11\,000\text{ p/cm}^3$ ). Le SMPS TSI 3938 présente une concentration beaucoup plus faible ( $\sim 8\,000\text{ p/cm}^3$ ) à ce pic.

Les écarts plus remarquables entre les différents MPSS se trouvent dans les particules plus petites que 30 nm. Pour les particules de plus de 70 nm, le MPSS Palas, le MPSS Tropos et l'UFP 3031 montrent une distribution similaire. Le SMPS TSI 3938 présente une concentration plus faible.

La raison principale de ces écarts pourrait être les pertes des particules à l'intérieur des instruments, qui peuvent être différentes d'un instrument à l'autre, notamment pour les petites particules moins de 20 nm. De plus, les pertes dans le système de séchage peuvent également devenir importantes (Gómez-Moreno et al. 2015), notamment pour le SMPS 3938 qui partage le système de séchage avec les autres appareils.

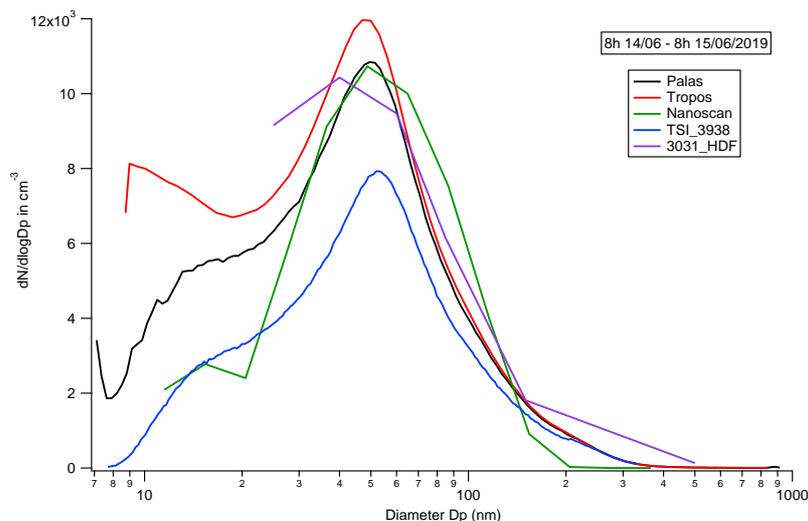


Figure 21 Distribution en taille ( $dN/d\text{Log}D_p$ ) au début de la campagne (moyenne 24h)

Au milieu de la campagne (22 juin 2019), le MPSS Tropos, le MPSS Palas et l'UFP 3031 montrent une distribution très similaire pour les particules entre 20-200 nm. La différence est plus importante pour les particules de moins

de 20 nm et de plus que 200 nm. Le Nanoscan montre une concentration plus élevée pour les particules entre 50 et 150 nm, mais une sous-estimation pour les particules de moins de 30 nm et de plus de 150 nm par rapport autres instruments. Le SMPS 3938 TSI affiche une distribution similaire que les autres MPSS mais avec une concentration beaucoup plus faible.

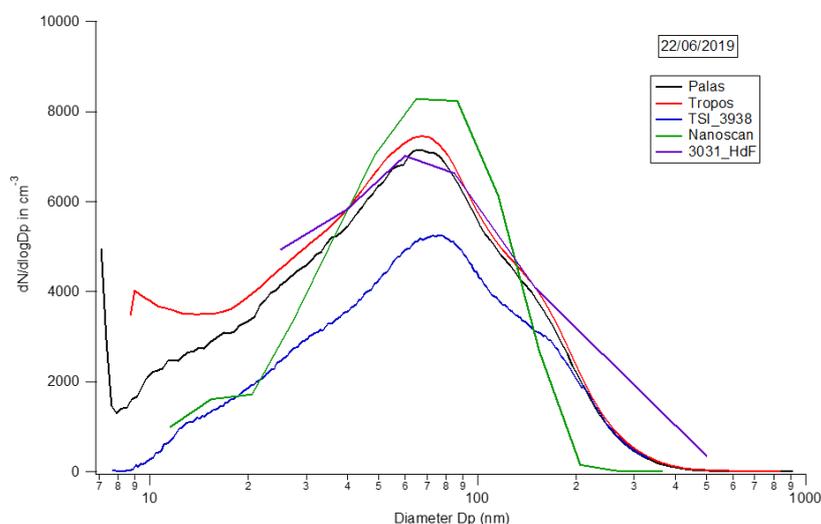


Figure 22 Distribution en taille ( $dN/dLogDp$ ) au milieu de la campagne (moyenne 24h)

A la fin de la campagne (28-29 juin 2019), la distribution en taille est similaire à celle du 22 juin. Les courbes du MPSS Tropos et du MPSS Palas sont bien corrélées pour la gamme 20 nm – 800 nm et nous avons aussi une bonne corrélation avec les UFP 3031 sur la gamme 20 nm – 200 nm. Le Nanoscan surestime la concentration au pic maximale (30- 150 nm) et sous-estime pour les particules plus petites (<30 nm) ou plus grandes (> 200 nm).

Le SMPS 3938 TSI présente toujours un niveau plus bas que les autres MPSS.

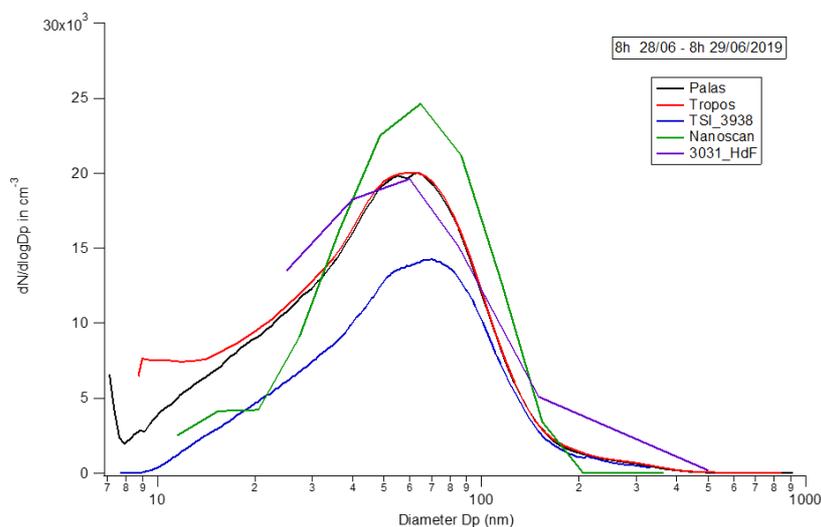


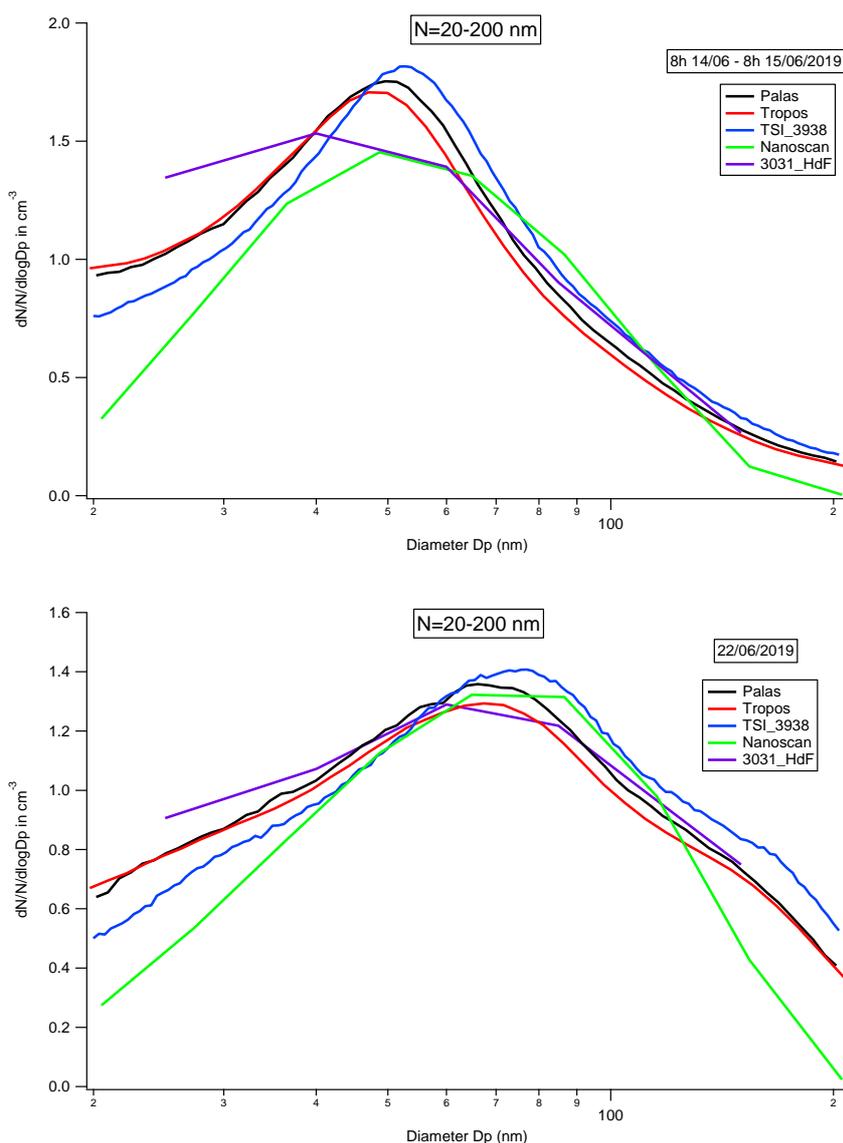
Figure 23 Distribution en taille ( $dN/dLogDp$ ) à la fin de la campagne (moyenne 24h)

## 4.2.2. Concentration $dN/N/dLogDp$

Sachant que chaque instrument dispose de son propre domaine de mesure, une autre concentration «  $dN/N/d\log D_p$  » est introduit dans cette section qui permet de normalisé les concentrations. Ici **N** est la concentration totale de particules entre 20 et 200 nm Tous les instruments désormais montrent une distribution en taille dans le même domaine de mesure.

Sur la Figure 24, tous les 3 graphes montrent une distribution en taille plus semblable entre instruments que la section précédente. Notamment pour le SMPS 3938, qui toujours présente un niveau plus bas en concentration «  $dN/d\log D_p$  ». Les écarts entre instruments sont également minimisés comparés aux Figure 21-22.

En conclusion, il est nécessaire de prendre en compte la gamme de mesure quand on veut comparer la distribution en taille des MPSS.



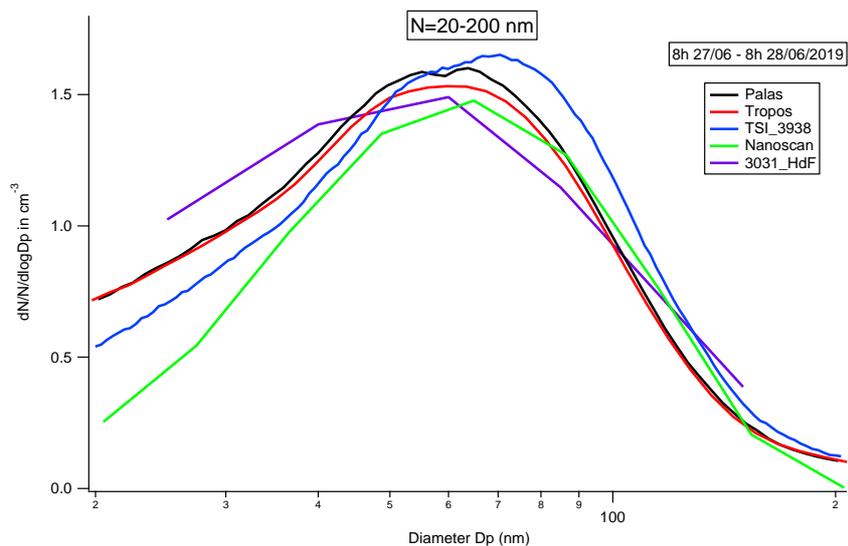


Figure 24 Distribution en taille ( $dN/N/d\text{Log}D_p$ ) au début/au milieu/à la fin de la campagne

- La plupart des MPSS et l'UFP 3131 présentent une distribution en taille similaire en concentration  $dN/d\text{Log}D_p$ . Cette concentration permet de négliger l'influence du nombre de canaux différent de chaque instrument. Le niveau du SMPS 3938 est plus faible que les autres appareils dû à sa gamme de mesure plus petite.
- La concentration «  $dN/N/d\text{Log}D_p$  » permet de normaliser le nombre de particules sur la même gamme de mesure (20-200 nm). La distribution en taille est améliorée pour tous les instruments.
- La différence plus importante se trouve pour les particules plus petites : moins de 20 nm.
- L'écart-type du MPSS Palas et du MPSS Tropos permet de confirmer le bon accord de leur distribution en taille.

# 5. Quel appareil pour quelle situation ?

Cette partie est basée principalement sur cet exercice d'intercomparaison, mais aussi sur les références bibliographiques et les retours des expériences de participants.

## **CPC à butanol (CPC 3750 et CPC Palas)**

Un CPC à butanol est conçu pour mesurer la concentration totale en nombre de particules. Il est important d'assurer le système de prélèvement et son fonctionnement selon la norme XP CEN/TS 16976 (Octobre 2016) pour une surveillance dans l'air ambiant. La contrainte majeure est d'utiliser le butanol comme le fluide de travail, qui est un alcool odorant et nécessite d'une intervention plus intensive (par exemple, remplir le réservoir butanol chaque 15 jours...). C'est la méthode de référence pour surveiller les PUF en air ambiant à long terme.

## **CPC à eau (CPC 3788)**

Le CPC à eau utilise de l'eau comme le fluide de travail, qui n'émet pas de vapeurs de solvants comme le butanol. Dans cette étude, il mesure une concentration totale plus élevée que les CPC à butanol. Ceci est probablement dû à sa limite de détection plus basse, qui est à 2.5 nm (7 nm pour les autres CPC). La contrainte majeure est que le CPC à base d'eau n'arrive pas à bien mesurer les particules purement hydrophobes et n'est pas la méthode de référence selon la norme XP CEN/TS 16976.

## **MPSS (MPSS Tropos, Palas, TSI 3938)**

Les MPSS sont utilisés pour mesurer une distribution en taille de particules. La méthode est normalisée par XP CEN/TS 17434 (Juillet 2020) pour déterminer des distributions granulométriques de particules dans l'air ambiant. Dans cette étude, nous observons que la concentration totale mesurée par les MPSS est souvent inférieure à celle des CPC. Ce type d'appareil pourrait être utilisé pour une étude spécifique (par exemple, la source des PUF, la nucléation/condensation...) ou une surveillance à long terme (mais la bancarisation et l'exploitation des données sont plus complexes que pour le CPC).

## **Nanosan**

Le Nanoscan SMPS est un MPSS portable qui mesure les particules dans la gamme 10 – 420 nm. Il présente moins de canaux que les MPSS classiques (11 contre 128) et il utilise un chargeur unipolaire de type corona, qui n'est conforme pas la norme XP CEN/TS 17434 (chargeur à diffusion bipolaire). Son avantage principal est sa mobilité (peu volumineux et peut fonctionner sur batterie) pour effectuer les études spécifiques de courte durée (mesure dans une voiture ou en air intérieur).

## **UFP 3031**

Comme le Nanoscan, il présente moins de canaux (6 canaux) que les MPSS et utilise un chargeur unipolaire non conforme à la norme XP CEN/TS 17434.

Ses avantages principaux sont : i) il n'utilise aucun fluide de travail ni source radioactive ; ii) il est assez facile à utiliser en réseau de surveillance (peu de maintenance, données faciles à intégrer dans les systèmes d'acquisition...). Il sera utilisé dans les études spécifiques (par exemple, l'étude de source PUF locales) pour mesurer les PUF en air ambiant.

## 6. Conclusion et perspectives

Atmo Hauts-de-France a organisé une intercomparaison des différentes technologies mesurant les particules ultrafines à Boves en juin 2019. **8 organismes** (Atmo Hauts-de-France, ISSeP, Airparif, Atmo Nouvelle-Aquitaine, LCSQA-LNE, LCSQA-INERIS, Addair, et TSI) avec **9 instruments incluant 3 CPC, 4 MPSS et 2 UFP 3031** ont participé à cet exercice.

L'objectif principal a été de comparer le nombre total et la distribution en taille de particules mesurés par différentes technologies, afin d'aider sur la comparaison des résultats obtenus sur lors des mesures terrains par différentes technologies ou modèle d'appareil et d'aider à choisir un outil adapté à la surveillance des particules ultrafines en air ambiant.

### Concentration totale en nombre de particules

Globalement, tous les instruments présentent une profil temporel similaire pendant toute la campagne.

Le CPC 3750 montre une bonne corrélation avec les autres CPC ( $r^2=0.94-0.95$ ), qui compte environ 20 % plus de particules que le CPC Palas. Le CPC à eau compte 13-74% de plus de particules que les CPC à butanol, qui est probablement dû à : i) son domaine de mesure plus étendue 2,5  $\mu\text{m}$  contre 7nm pour les CPC à butanol ; ii) la ligne de prélèvement est différente pour le CPC à eau et le CPC Palas.

Les deux UFP 3031 ont une corrélation excellente entre eux ( $R^2=0,99$ ). Mais leurs concentrations sont souvent plus basses que ceux des CPC et les corrélations avec les CPC sont assez faibles ( $R^2= 0,54-0,58$ ). Les explications possibles : i) les particules en dessous de 20 nm ne sont pas prises en compte par l'UFP 3031 ; 2) la méthode de mesure est différente.

Les concentrations totales du MPSS Tropos et du MPSS Palas montrent une bonne corrélation avec les CPC à butanol (CPC 3750 et CPC Palas). Le SMPS 3938 sous-estime la concentration totale, probablement dû à sa gamme de mesure plus petite (7,5 – 334 nm). Le Nanoscan montre une faible corrélation avec les CPC à butanol ( $R^2= 0,62-0,69$ ).

### Distribution en taille de particules

Tous les MPSS et les UFP 3031 montrent une distribution en taille en forme similaire, mais avec des niveaux de concentration différents. Le nombre de canaux de l'UFP 3031 (6 canaux) et du Nanoscan (13 canaux) est nettement moins important que les autres MPSS (71-128 canaux), ce qui donne une distribution en taille moins fine en termes de résolution. En général, les écarts plus remarquables entre eux sont observés pour les particules de moins de 20 nm ou de plus de 200 nm. Le MPSS Tropos et le MPSS Palas montre une distribution en taille très similaire dans la gamme 20-800 nm. Enfin, il est plus pertinent pour comparer les distributions de normaliser sur un domaine de mesure commun.

### Perspectives

La limite de cet exercice est qu'aucun CPC/MPSS de référence n'a été utilisé dans cette campagne. Les résultats obtenus nous donnent des informations qualitatives et relatives. A l'avenir, un étalonnage de l'instrument et des exercices d'intercomparaison réguliers sont nécessaires pour suivre la performance des instruments utilisés.

# Référence

- Atmo HdF. 2017. « Stratégie «particules ultrafines» pour la région Hauts-de-France (2017-2021) ». N°01/2017/SZ. [https://www.atmo-hdf.fr/joomlatools-files/docman-files/Rapport\\_et\\_synthese\\_etudes/strategie\\_PUF\\_Hauts-de-France\\_2017\\_min.pdf](https://www.atmo-hdf.fr/joomlatools-files/docman-files/Rapport_et_synthese_etudes/strategie_PUF_Hauts-de-France_2017_min.pdf).
- Atmo HdF. 2018. « Intercomparaison sur deux granulomètres UFP 3031 à Lille ».
- Chen, Rui, Bin Hu, Ying Liu, Jianxun Xu, Guosheng Yang, Diandou Xu, et Chunying Chen. 2016. « Beyond PM2.5: The role of ultrafine particles on adverse health effects of air pollution ». *SI: Air Pollution* 1860 (12): 2844-55. <https://doi.org/10.1016/j.bbagen.2016.03.019>.
- Dalle, et Le Bihan. 2016. « Inter-comparaison 2016 sur les granulomètres UFP 3031 ». Rapport LCSQA DRC-16-161172-09435A.
- Gómez-Moreno, Francisco J., Elisabeth Alonso, Begoña Artíñano, Vanesa Juncal-Bello, Silvia Iglesias-Samitier, María Piñeiro Iglesias, Purificación López Mahía, et al. 2015. « Intercomparisons of Mobility Size Spectrometers and Condensation Particle Counters in the Frame of the Spanish Atmospheric Observational Aerosol Network ». *Aerosol Science and Technology* 49 (9): 777-85. <https://doi.org/10.1080/02786826.2015.1074656>.
- LCSQA. 2019. « Mesure des particules ultrafines au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air ».
- Le Bihan, et Dalle. 2015. « Inter-comparaison 2015 sur les granulomètres UFP 3031 ». Rapport LCSQA DRC-15-152367-11727A.
- Le Bihan, Dalle, et Meunier. 2014. « Inter-comparaison 2014 sur les granulomètres UFP 3031 ». Rapport LCSQA DRC-15-144358-12985A.
- Liu, Wei, Stanley L. Kaufman, Brian L. Osmondson, Gilmore J. Sem, Frederick R. Quant, et Derek R. Oberreit. 2006. « Water-Based Condensation Particle Counters for Environmental Monitoring of Ultrafine Particles ». *Journal of the Air & Waste Management Association* 56 (4): 444-55. <https://doi.org/10.1080/10473289.2006.10464520>.
- Schulz, Holger, Volker Harder, Angela Ibaldo-Mulli, Andrej Khandoga, Wolfgang Koenig, Fritz Krombach, Roman Radekewicz, Andreas Stampfl, Barbara Thorand, et Annette Peters. 2005. « Cardiovascular Effects of Fine and Ultrafine Particles ». *Journal of Aerosol Medicine* 18 (1): 1-22. <https://doi.org/10.1089/jam.2005.18.1>.

# Annexes

## Annexe 1 : Glossaire

**AASQA** : Association Agréée pour la Surveillance de la Qualité de l'Air.

**ANSES** : Agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail

**BTEX** : Benzène – Toluène – Ethylbenzène – Xylènes

**CPC** : Condensation Particle Counter

**DMA** : Differential Mobility Analyser

**DMPS** : Differential mobility particle sizer

**ISSeP** : Institut Scientifique de Service Public (Belgique)

**INERIS** : Institut national de l'environnement industriel et des risques

**LCSQA** : Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

**LNE** : Laboratoire national de métrologie et d'essais

**MPSS** : Mobility particle size spectrometers

**PRSQA** : Programme Régional de Surveillance de la Qualité de l'Air

**PUF** : Particules ultrafines

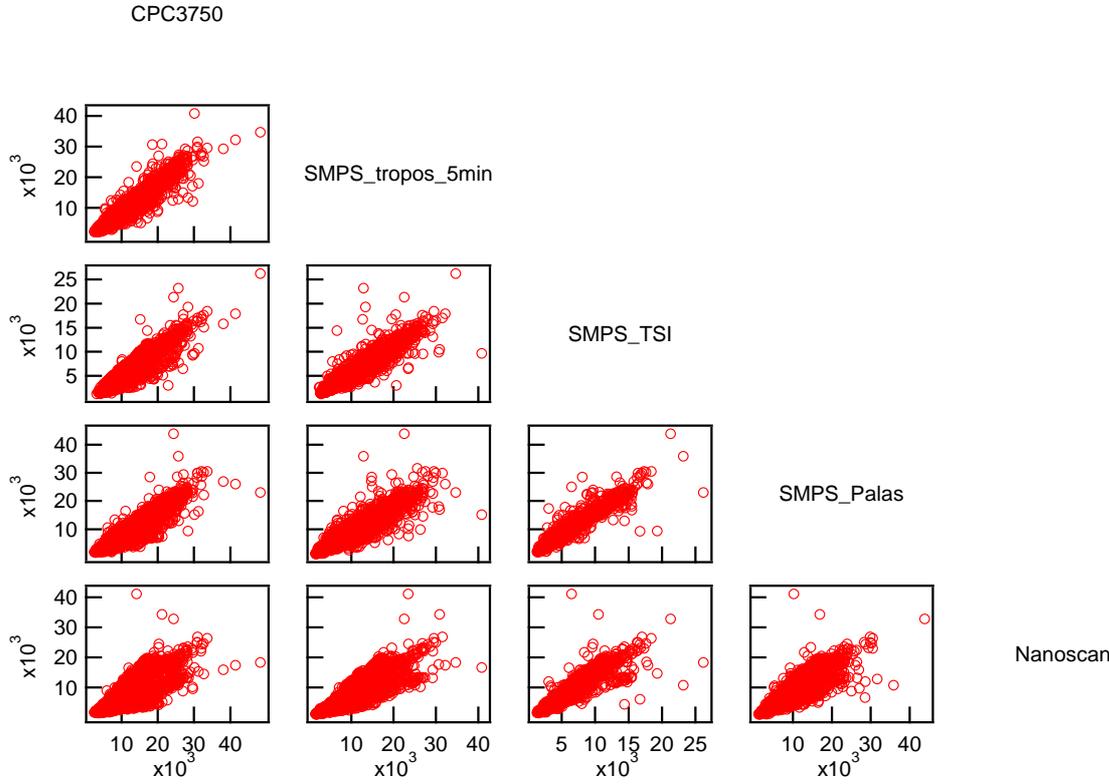
**SMSP** : Scanning mobility particle sizer

## Annexe 2 : Caractérisation des 3 technologies pour mesurer les PUF

(Source : [https://www.lcsqa.org/system/files/rapport/LCSQA\\_Note\\_technique\\_PUF\\_09avril2019.pdf](https://www.lcsqa.org/system/files/rapport/LCSQA_Note_technique_PUF_09avril2019.pdf))

	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./TC</b> <b>Erreur ! Source du renvoi introuvable./WG 32 N 173</b> : 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
Métrique	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 un projet de norme CEN.
Inconvénients	La norme CEN impose l'usage de butanol, alcool odorant et interférent 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 interférent 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 autorisée 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.

# Annexe 3 : Corrélations de la concentration totale en nombre entre le CPC et les MPSS

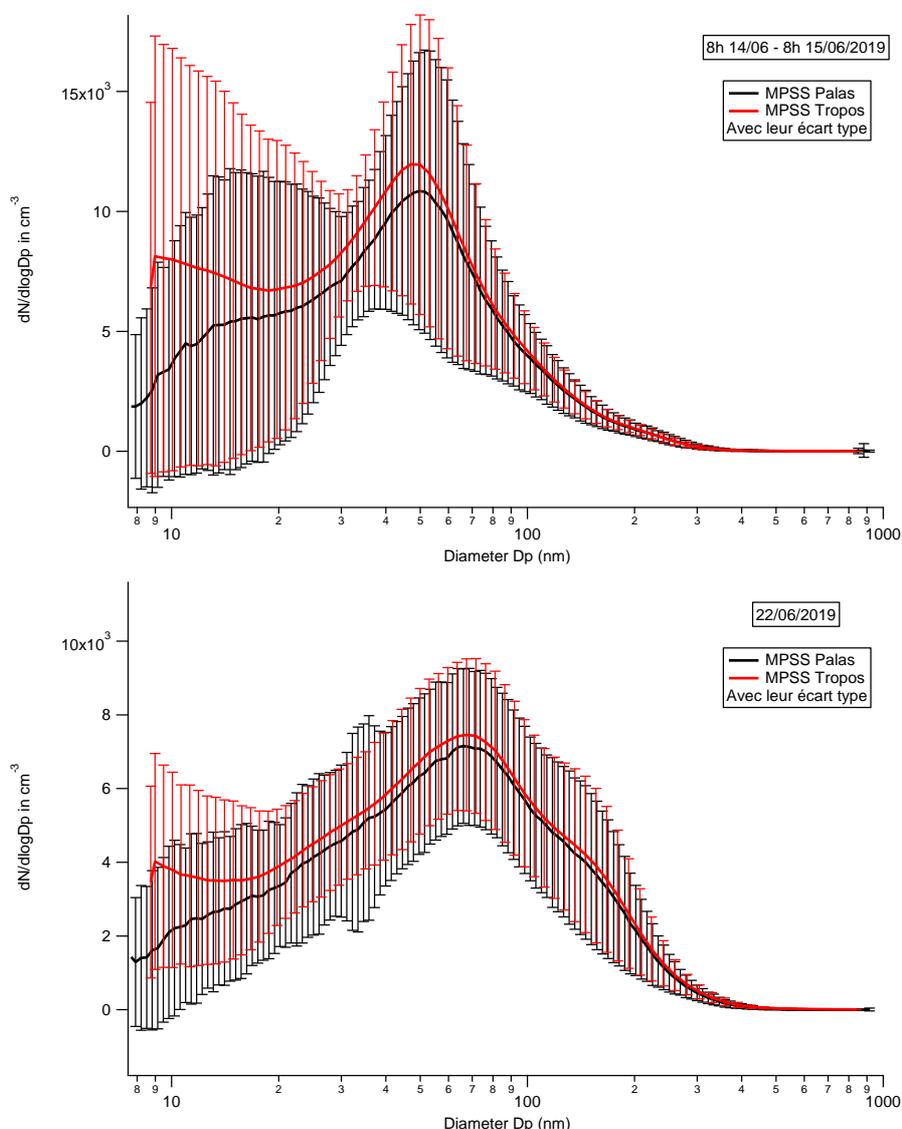


## Annexe 4 : Ecart type de la distribution en taille

Comme indiqué dans la section 4.2.1, le MPSS Palas et le MPSS Tropos montrent une distribution en taille ( $dN/d\log D_p$ ) très similaire. Dans cette partie, nous comparons leur écart type qui présente la variabilité de la concentration dans une période de mesure (Figure 25). Par exemple, pour la période 14-15 juin 2019, la concentration des particules à 20 nm varie entre 830-12800  $p/cm^3$  pour le MPSS Tropos et entre 430-11200  $p/cm^3$  pour le MPSS Palas. Ce type de graphe peut nous donner les informations supplémentaires à la concentration moyenne, en indiquant la dispersion des données autour de la moyenne.

En général, la dispersion du MPSS Palas et du MPSS Tropos sont très proches, notamment sur le graphique à la fin de la campagne. Pour le début de la campagne, le MPSS Palas montre une dispersion plus importante pour les particules en dessous de 20 nm, ce qui indique l'incertitude importante pour les petites particules.

Cette section montre que les deux MPSS mesurent non seulement une distribution en taille semblable, mais aussi une dispersion similaire pour les particules plus de 20 nm. Ces résultats assurent la qualité de mesure pour ces deux MPSS.



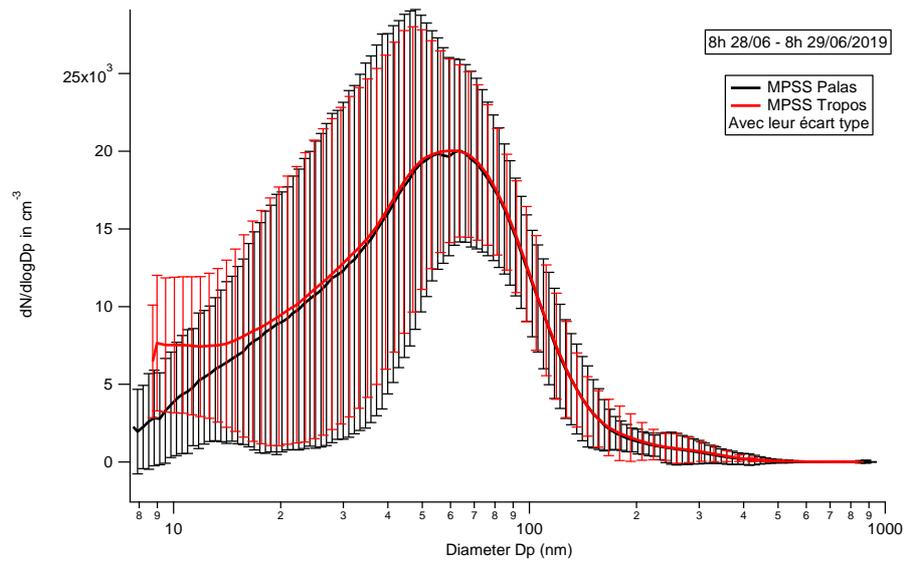


Figure 25 L'écart type de la distribution en taille ( $dN/d\log D_p$ ) au début/au milieu/à la fin de la campagne

RETROUVEZ TOUTES  
NOS **PUBLICATIONS** SUR :  
[www.atmo-hdf.fr](http://www.atmo-hdf.fr)

**Atmo Hauts-de-France**

Observatoire de l'Air

199, rue Colbert – Bâtiment Douai

59000 Lille

