

# METHODOLOGIE DE COMBINAISON DES MESURES DE LA TAILLE ET DE LA CONCENTRATION POUR DES MESURES FIABLES DES PARTICULES ULTRAFINES DANS L'AIR AMBIENT

A. Koched<sup>\*1</sup>, S. Schmitt<sup>2</sup>, T. Tritscher<sup>2</sup>, E. Filimundi<sup>1</sup>, S. Percot<sup>1</sup>, T. Krinke<sup>2</sup>, O.F. Bischof<sup>2</sup>

<sup>1</sup>TSI France Inc., Hôtel Technologique BP100, Technopole de Château Gombert, Marseille, France

<sup>2</sup>TSI GmbH, Neuköllner Strasse Str. 4, Aix-la-Chapelle, Allemagne

\*Courriel de l'orateur : amine.koched@tsi.com

## RESUME

La mesure de concentrations massiques des particules PM2.5 et PM10 a longtemps été la norme pour la quantification et la caractérisation réglementaire de la qualité de l'air ambiant en extérieur. Durant la dernière décennie, l'intérêt pour la mesure des particules ultrafines PUF a gagné en importance en dehors du champ de la recherche atmosphérique et de nombreuses études ont conclu à l'importance de la mesure de la concentrations en nombre (PN) des PUF ainsi que leurs distributions en tailles (PSD) dans l'air ambiant en lien avec le risque sanitaire qu'elles peuvent engendrer.

Dans un souci d'harmonisation de ces mesures, le comité européen CEN a publié les recommandations techniques CEN/TS 16976 pour le comptage des particules et CEN/TS 17434 pour la mesure de la taille des particules par des spectromètres à mobilité électrique SMPS<sup>TM</sup> ou MPSS. Ces documents décrivent des méthodes standardisées en définissant les spécifications techniques pour l'appareillage à utiliser pour le prélèvement, le conditionnement et la mesure de ces particules ainsi que la méthodologie d'interprétation pour l'analyse et l'exportation des résultats des mesures. De nombreux projets et réseaux du type ACTRIS ou GAW ont adopté ces recommandations. Cette étude montre comment un comptage et une mesure de la taille des particules en parallèle dans l'air ambiant peuvent être complémentaires pour l'évaluation de la qualité des données et démontre qu'une concordance à environ 10% d'écart peut être atteinte sur la concentration totale des particules mesurée à la fois par un CPC de référence (modèle 3750-CEN10, TSI Inc., Shoreview, USA) avec un D50 fixé à 10 nm et le nouveau SMPS à large gamme de mesure (modèle 3938W50-CEN10, TSI Inc., Shoreview, USA).

## ABSTRACT

PM2.5 and PM10 particle mass based particulate matter measurements were considered as the standard for the regulatory quantification and characterization of ambient air quality for many years. During the last decade, interest in the measurement of ultrafine particles UFP has gained importance and many studies have underlined to the importance of measuring the UFP particle number (PN) concentration as well as their size distributions (PSD) in ambient air due to their potential risks for human health. In order to harmonize these measurements, the European committee CEN has published the technical recommendations CEN/TS 16976 for counting these particles using a Condensation Particle Counter (CPC) and CEN/TS 17434 for sizing them using a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS<sup>TM</sup>) or MPSS. These documents describe standardized methods by defining the technical specifications for the equipment to be use for sampling, conditioning and measuring these particles, the measurement procedure and the methodology for the analysis and the reporting of the data. Many projects and networks such as ACTRIS or GAW have adopted these recommendations. This study shows how counting and sizing in parallel ambient measurement can be beneficial for data quality assessment and demonstrates that a total PN closure can be achieved to within ~10% using a CPC (model 3750-CEN10, TSI Inc., Shoreview, USA) with a D50 tuned to 10 nm; and a newly developed wide-range Scanning Mobility Particle Sizer (model 3938W50-CEN10, TSI Inc., Shoreview, USA).

**MOTS-CLÉS** : UFP, SMPS, CNC, Comparaison / **KEYWORDS**: UFP, SMPS, CPC, Comparison

## 1. INTRODUCTION

Pour les mesures atmosphériques de la concentration en nombre de particules (PN), les compteurs de noyaux de condensations (CNC) sont les instruments les plus communément utilisés. Le CNC peut être utilisé seul ou bien intégré dans un spectromètre à mobilité électrique (SMPS<sup>TM</sup> ou MPSS) qui mesure la distribution granulométrique des aérosols atmosphériques et fournit en même temps la concentration totale.

La résolution temporelle élevée du CNC par rapport au SMPS permet une description en temps réel de la dynamique du processus d'émission d'aérosols et offre en plus une information importante pour caractériser la fiabilité de la mesure SMPS. En ce sens, la CEN/TS 17434 demande la confirmation expérimentale de la précision de la concentration en nombre total de particules intégrées sur la gamme de granulométrie mesurée par le SMPS par comparaison avec un CNC de référence.

Les mesures de concentration obtenues par le CNC seul et par le SMPS sont régulièrement comparées bien que l'accord total puissent ne pas être atteint à cause de plusieurs facteurs :

- Une différence entre le diamètre de coupure D50 du CNC de référence et le canal de la plus petite taille mesurable par le SMPS. En ce sens, étant donné que la communauté européenne de surveillance de la qualité de l'air a traditionnellement effectué des balayages SMPS à partir d'une taille de 10 nm, la recommandation technique CEN 16976 prévoit de faire passer le diamètre de coupure D50 requis pour CNC de 7 nm à 10 nm.

- L'application potentielle de toute correction empirique dans l'algorithme d'inversion SMPS qui ne peut pas être appliquée au CNC (par exemple, la correction des pertes de diffusion dépendant de la taille et de l'efficacité de comptage du CNC).
- Une forte variabilité de la concentration en nombre de particules qui conduira à la violation de l'hypothèse de base d'une population d'aérosols stable pendant la durée de balayage du SMPS.

Dans cette étude, il a été constaté que, moyennant un post-traitement adapté, il est possible d'obtenir un bon accord sur les mesures de PN effectuées à l'aide d'une combinaison d'instruments conformes CEN/TS.

## 2. MOYENS DE MESURES UTILISES

Les mesures de concentration des particules fines ont été réalisées à l'aide de CNC conformes CEN/TS 16976 (Modèle 3750-CEN10, TSI Inc., Shoreview, USA) avec un D50 modifié à 10 nm et calibrés par le World Calibration Center for Aerosol Physics WCCAP (Institute for Tropospheric Research - TROPOS) à Leipzig en Allemagne.

La granulométrie des aérosols a été mesurée à l'aide d'un spectromètre de mobilité électrique à large gamme pour la surveillance de l'air ambiant (modèle 3938W50-CEN10, TSI Inc.) conforme CEN/TS 17434. Cet SMPS est équipé d'un analyseur différentiel de mobilité électrique DMA à large gamme (modèle 3083, TSI Inc.) permettant un scan entre 10 nm et 800 nm en une seule fois et conçu sur la base du modèle DMA bien établi dit type Vienna (Winklmayr et al. 1991) utilisé par TROPOS. Une source Kryton-85 a été utilisée pour garantir l'équilibre de charges des particules dans le SMPS.

Le prélèvement des particules dans l'air ambiant a été fait à l'aide d'une ligne de prélèvement conforme CEN, optimisée en termes de pertes (modèle 3750200, TSI Inc.) et équipée d'un sécheur à membrane Nafion, une tête PM10, un cyclone PM2.5 et d'un capteur d'humidité relative et de température. Une solution logicielle adaptée a été utilisée pour le contrôle de l'acquisition et l'export des données.

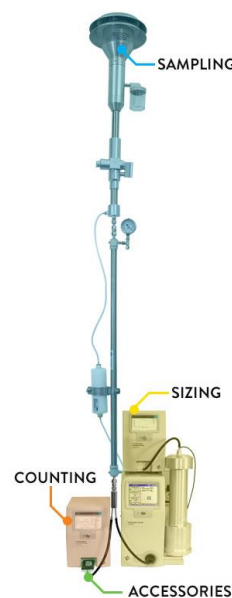


Figure 1. Instrumentation used

## 3. RESULTATS ET ANALYSES

### 3.1. Qualification des moyens d'essais

Pour tester le bon fonctionnement du système SMPS, des tests de validation ont été réalisés en utilisant deux types d'aérosols : monodispersé et polydispersé. La figure 2 ci-dessous montre un bon accord entre le mode des PSD mesurés à l'aide du SMPS et le diamètre moyen des billes PSL calibrées considérées.

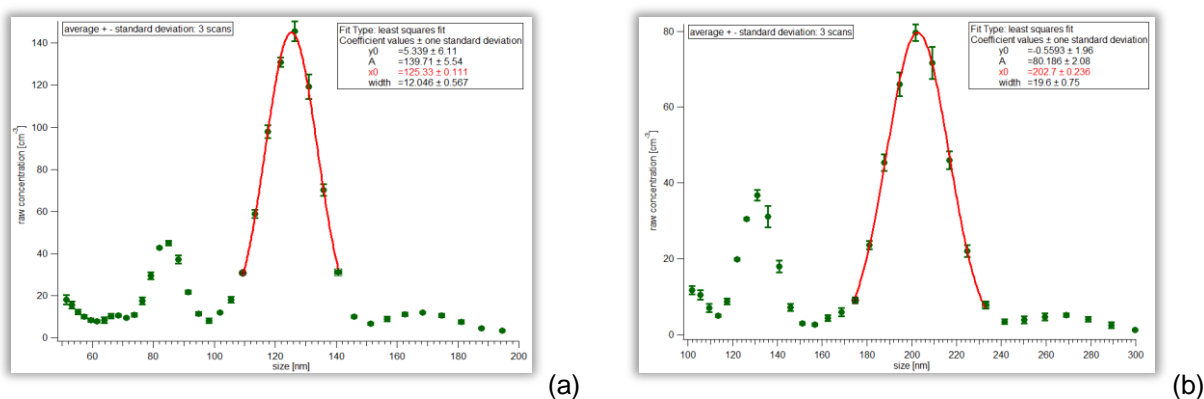


Figure 2. PSD obtenues pour des billes calibrées de : a) 125 nm, b) 203 nm

L'intercomparaison des concentrations de PSD et de PN réalisée avec un aérosol polydispersé (solution atomisée de saccharose à 0,1 %) a montré une différence inférieure à 10 % en termes de concentrations mesurées par le SMPS et le CPC, avec un mode stable de PSD sur les 10 analyses effectuées (Figure 2).

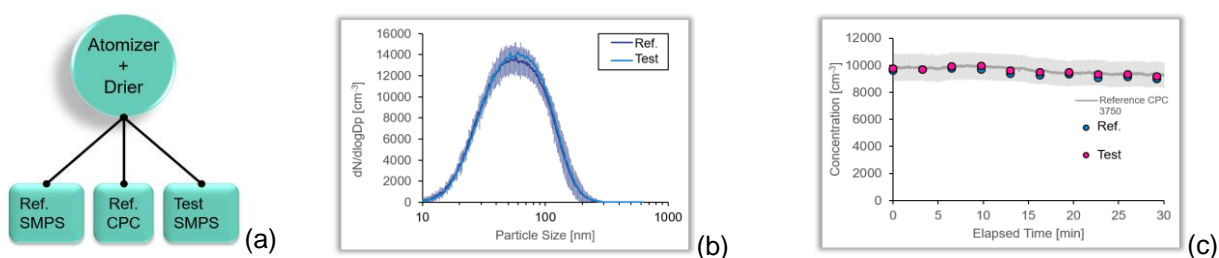


Figure 3. Mesures comparatives sur un aérosol polydispersé : a) Configuration de la mesure, b) PSD moyennées sur 10 scans (Réf. SMPS  $\pm 10\%$ ), c) PN moyennées sur 10 scans (Réf. CNC  $\pm 10\%$ )

### 3.1. Résultats des mesures dans l'air ambiant

Des mesures de surveillance de l'air ambiant ont été effectuées durant 24 jours en continu dans une zone d'activités mixtes (dépôt de bus de transport, service logistiques, routes, activités commerciale et bureautiques) dans la ville de Aix la Chapelle en Allemagne en utilisant le système SMPS à large gamme et le CEN-CNC fonctionnant côte à côte. Le temps de scan considéré pour la mesure de PSD a été fixé à 5 min incluant un temps mort (purge et réinitialisation) entre les scans successifs. La résolution temporelle du CNC de référence a été fixée à 1 Hz pour le comptage total des PN. La figure 3 montre la variation temporelle des distributions de tailles sur deux jours. Il est observé une corrélation entre la concentration des PUF et les activités anthropiques sur le site considéré : une forte augmentation des concentrations de jour et une diminution notable la nuit. De plus, la fraction importante de la concentration totale de PN est détectée sur la gamme de tailles les plus petites (<50 nm) assimilables à un mode de nucléation pouvant être lié à des émissions réelles issues des sources présentes sur le site de surveillance.

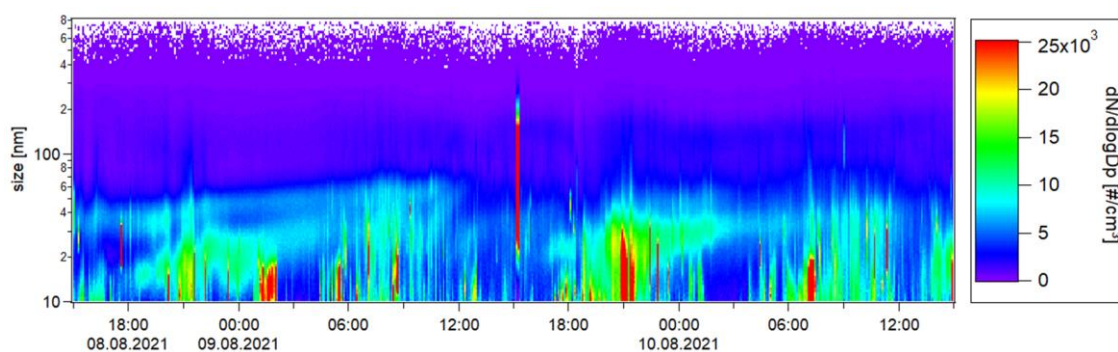


Figure 4. Variation temporelle des PSD sur deux jours de mesures avec le SMPS

La variation des concentrations totales de PN au cours du temps mesurée par le CNC et le SMPS est présenté sur la figure 4. La résolution temporelle plus élevée du CNC a permis une détection plus fine de la dynamique de l'aérosol causée par les sources environnantes, liées principalement au trafic de passage et à l'activité dans un dépôt de la compagnie de bus locale à côté). Même si la tendance globale concordait bien entre le SMPS et les données CNC résolues en temps, un écart dans les valeurs de concentrations totales de PN est détecté même en moyennant les données CNC sur la durée d'un scan SMPS, en particulier lors de forte variabilité de la concentration.

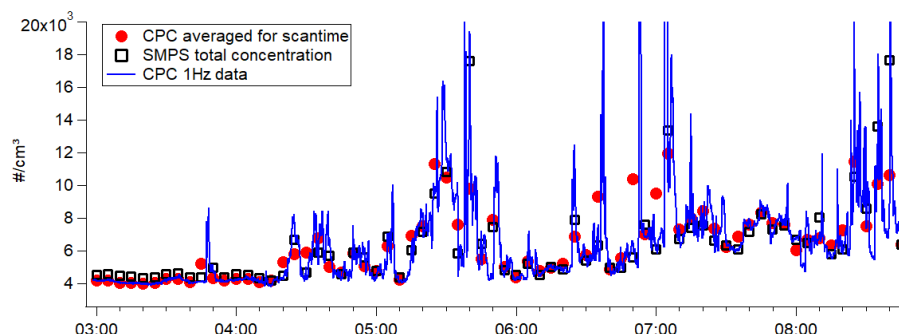


Figure 5. Comparaison directe des mesures de concentrations totales entre le CNC de référence et le SMPS

### 3.2. Méthodologie de comparaison des mesures de concentrations entre le SMPS et le CNC de référence

La comparaison des concentrations totales de PN entre le SMPS et le CNC de référence pourrait présenter des écarts et devrait se faire moyennant certaines précautions. En effet, l'écart sur la concentration observée

pourrait être lié aux spécifications du CNC ; en fonction de sa courbe d'efficacité, le CNC peut toujours compter une fraction de particules en dessous de 10 nm, non vues par le SMPS, de par sa limite de détection définie comme la limite où le CNC voit 50% de la concentration réelle. Ceci est amplifié surtout si le D50 du CNC ne correspond pas à la taille inférieure que le SMPS peut détecter. Eventuellement, les données SMPS ne devraient dans ce cas pas être corrigées pour l'efficacité de comptage du CNC.

D'autre part, il est mentionné dans la CEN/TS 17434 que "... les périodes où l'aérosol présente un mode de nucléation doivent être exclues..." de l'analyse de comparaison entre le SMPS et le CNC sans donner plus d'instructions sur la façon de procéder. Même si la nucléation pourrait faire partie du processus physique d'émission des sources surveillées, cette recommandation vise à exclure, principalement, les périodes de forte variabilité des valeurs de concentration qui peuvent constituer un biais de mesure pour les scans SMPS et avoir aussi une incidence sur la comparaison des données de concentration pour le contrôle qualité de la mesure.

Ainsi, un moyen fiable de comparaison de la concentration totale entre le SMPS et le CNC de référence nécessiterait donc de :

- Maximiser la fraction de données conservées pour l'analyse à plus de 50% par exemple (lors du filtrage selon la recommandation CEN/TS 17434),
- Intégrer les données CNC sur une durée équivalente à la durée du scan SMPS en utilisant un critère qui tient compte de la variabilité des données, en plus de la donnée moyenne, comme le calcul du coefficient de variation éventuellement,
- Retenir pour la comparaison la combinaison des deux critères précédents permettant la plus forte corrélation entre les deux mesures de concentration du SMPS et du CNC en termes de linéarité et de dispersion des données.

Un exemple de résultats obtenus en appliquant la méthodologie précédente est présenté sur la figure 5 où la dispersion et la linéarité entre les concentrations totales mesurées par le CNC et le SMPS ont pu être améliorées considérablement confirmant un écart ne dépassant pas ~10% pour la plus parts des mesures comparées.

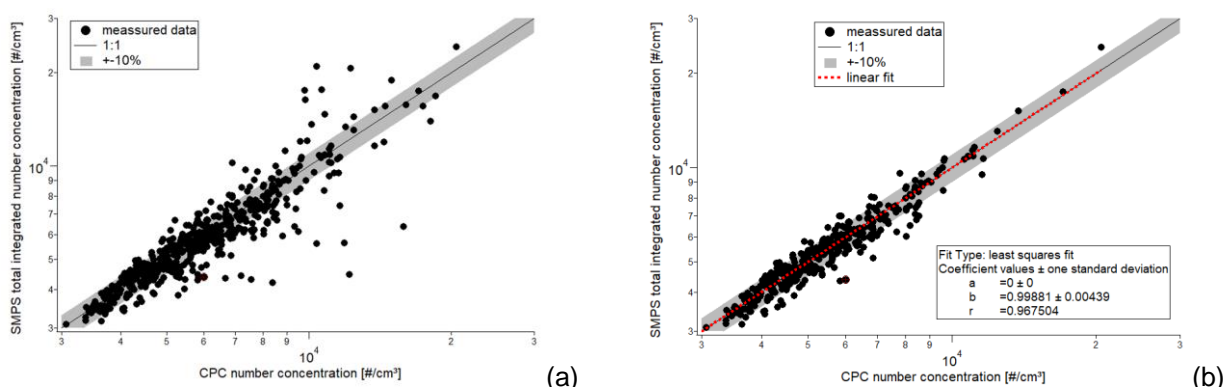


Figure 6. Comparaison de la concentration totale entre le CNC de référence et le SMPS ; a) avant filtrage des données ; b) après filtrage des données

#### 4. CONCLUSION

Un nouvel ensemble de solutions techniques destinées à la surveillance de la qualité de l'air est présenté et utilisé dans cette étude pour mesurer la distribution granulométrique et la concentration en nombre total de particules ultrafines dans l'air ambiant. L'efficacité et l'importance d'utiliser un CEN-CNC de référence pour la mesure de la concentration totale en combinaison avec un CEN-SMPS pour les applications de surveillance de la qualité de l'air ont été démontrés. La résolution temporelle élevée du CNC en fait un outil fiable pour l'évaluation de la qualité de la mesure SMPS car il permet une quantification de la variabilité de la concentration qui pourrait ne pas être détectée lors des scans SMPS. Une suggestion de méthodologie pour comparer les données de concentration totale entre le SMPS et le CPC a été présentée et utilisée avec succès pour confirmer qu'une concordance en nombre de particules fines peut être atteinte à bien moins de 10 % pour ces deux instruments.

CEN/TS 16976. Ambient air - Determination of the particle number concentration of atmospheric aerosol, published August, 2016.

CEN/TS 17434. Ambient air - Determination of the particle number size distribution of atmospheric aerosol using a Mobility Particle Size Spectrometer (MPSS), published June, 2020.

Winklmayr, W., et al. (1991). A New Electromobility Spectrometer for the Measurement of Aerosol Size Distributions in the Size Range From 1 to 1000 nm, J. Aerosol Sci. 22:289–296.