

**ECOLE DES MINES DE DOUAI**  
**DEPARTEMENT CHIMIE ET ENVIRONNEMENT**

**Etude n°5**  
**Partie 1**

**METROLOGIE DES PARTICULES**

-----

Programme pilote national de surveillance  
des particules PM10 et PM2,5

Avec la collaboration technique de

Jean-Luc HOUDRET, François MATHE  
Richard DYBIAK, Carlo ANGOTZI  
Décembre 2002

# SOMMAIRE

<b>1.</b>	<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>3</b>
<b>2.</b>	<b>CAMPAGNES DE MESURE</b> .....	<b>4</b>
2.1	LES PARTICIPANTS.....	4
2.2	LES MESURES AUTOMATIQUES.....	5
2.3	LES MESURES GRAVIMÉTRIQUES.....	5
2.3.1	<i>Principe</i> .....	5
2.3.2	<i>Protocole de pesée</i> .....	5
2.3.3	<i>Incertitude sur la méthode gravimétrique</i> .....	6
<b>3.</b>	<b>PROCÉDURES D'EXPLOITATION DES DONNÉES</b> .....	<b>7</b>
3.1	DONNÉES MÉTÉOROLOGIQUES.....	7
3.2	CHOIX DES MÉTHODES D'ÉTUDE STATISTIQUE .....	7
<b>4.</b>	<b>EXPLOITATION DES DONNÉES PM10</b> .....	<b>8</b>
4.1	TAUX DE FONCTIONNEMENT.....	8
4.2	RÉSULTATS GÉNÉRAUX.....	8
4.2.1	<i>Degré de comparabilité entre Teom et Partisol</i> .....	8
4.2.2	<i>Les dépassements de la valeur limite 50 <math>\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}</math></i> .....	9
4.3	DEUX CLASSES DE DONNÉES PM10 : (PARTISOL-TEOM) < OU > 5 $\mu\text{G}\cdot\text{M}^{-3}$ .....	11
4.4	ÉTUDE DES FACTEURS DE CORRECTION SELON LA SAISON .....	15
4.5	ÉTUDE DES FACTEURS DE CORRECTION SELON LA ZONE NORD ET SUD.....	15
4.6	EQUATION DE CORRECTION DES DONNÉES PM10 ISSUES DES TEOM .....	16
<b>5.</b>	<b>EXPLOITATION DES DONNÉES TEOM PM2.5</b> .....	<b>17</b>
5.1	RÉSULTATS GÉNÉRAUX RELATIFS AUX PM2.5 .....	17
5.2	FRACTION GRANULOMÉTRIQUE INTERMÉDIAIRE .....	19
5.3	ÉTUDE PARALLÈLE DES SÉRIES DE DONNÉES.....	19
<b>6.</b>	<b>DISCUSSION</b> .....	<b>21</b>
6.1	ÉTUDE DE SCÉNARIOS.....	21
6.2	CHOIX DE LA RÉFÉRENCE .....	24
6.3	ROBUSTESSE DES TESTS STATISTIQUES.....	25
<b>7.</b>	<b>CONCLUSIONS</b> .....	<b>25</b>

**RESUME de l'étude n°5-partie 1 du rapport d'activités 2002 de l'EMD****Etude suivie par : Jean-Luc HOUDRET****Tél : 03 27 71 26 13****METROLOGIE DES PARTICULES**  
Programme pilote national de surveillance  
des particules PM10 et PM2.5

Deux séries de campagnes de mesure (de 29 à 139 jours) ont été réalisées en été et en hiver dans 12 villes françaises :

Bordeaux, Clermont-Ferrand, Douai, Grenoble, Le Havre, Lille, Marseille, Paris, Rouen, Strasbourg (2 sites), Toulouse et Vitry / Seine.

Ces campagnes ont permis de comparer les appareils automatiques TEOM de mesure des PM10 et des PM2.5 utilisés par les AASQA avec le préleveur de référence PARTISOL suivi de la mesure gravimétrique des PM10. Les résultats principaux de ces campagnes peuvent être résumés par les chiffres suivants :

- 1154 groupes de données PM10 Partisol+Teom et PM2.5 Teom ;
- seulement 27% des écarts (Partisol-Teom) en PM10 sont supérieurs à 5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en hiver et/ou dans le nord de la France et nécessiteraient d'être corrigés;
- les dépassements de la valeur limite journalière en PM10 n'interviennent que 7,1% du temps, et sont inclus dans les 27% définis ci-dessus;
- les ratios moyens PM2.5/PM10 par ville sont compris entre 58% et 73% , mais les écarts absolus moyens par ville sont tous inférieurs à 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  ;
- la fraction granulométrique intermédiaire ( PM10-PM2.5 ) est peu variable, 7,2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne avec seulement 16,5% des 1154 valeurs dépassant 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  ; une correction des données devrait plutôt s'appliquer aux PM2.5 qu'aux PM10;
- la panoplie des facteurs de correction possible à appliquer aux PM10 mesurées par les TEOM s'étend de 1,053 à 1,356 selon la saison, le site, et le mode de calcul ;
- le Partisol comparé à la moyenne de 5 autres préleveurs (travaux normalisation CEN sur les PM2.5) apparaît comme un appareil de référence satisfaisant, et peut être utilisé pour les PM10.

Le choix d'un facteur de correction éventuelle apparaît difficile à établir scientifiquement et n'a pas été réalisé pour l'instant.

## . INTRODUCTION

La directive européenne 1999/30/CE préconise d'effectuer des mesures des particules en suspension PM10 et PM2.5 à l'aide d'une méthode de référence gravimétrique. Si d'autres méthodes sont utilisées, il convient de vérifier leur équivalence à la référence et de déterminer un facteur (ou relation) entre les deux méthodes.

La version en langue anglaise de la Directive préconise une « consistent relationship or factor » alors que la version en langue française a traduit cela en « facteur ou relation constant ».

**Extrait de la directive 1999/30/CE :** « les états membres veillent à ce que les stations de mesure fournissant des données sur les concentrations de PM2,5 soient installées et exploitées si possible aux mêmes endroits que les points de prélèvement des PM10 ... Des exercices de comparaison des méthodes d'échantillonnage et de mesure des PM2,5 sont effectués dès que possible ».

**Extrait des recommandations du GT experts européens :** « Des critères minimaux à respecter pour la mise en évidence de l'équivalence ou de la relation entre la méthode de référence gravimétrique et les méthodes automatiques ont été émis, concernant:

- les procédures ou stratégies d'utilisation et de contrôle du facteur (ou de l'équation) de correction pour les mesures en routine de réseau,
- l'utilisation d'un facteur de correction par défaut de valeur 1,3 sur les jauges bêta et les TEOM, utilisable par les Etats Membres n'ayant pas encore effectué leur propre expérimentation. »

Il apparaît évident aujourd'hui que la norme européenne EN 12341 sur la qualification de têtes PM10 ne répond pas aux besoins des utilisateurs de méthodes automatiques dans la limite où ces dernières étaient exclues de la norme. Compte tenu de ce fait, les travaux européens relatifs aux particules PM2,5 ont été mis en place différemment afin :

- de revoir les critères de choix des références potentielles,
- de prendre en compte les méthodes automatiques,
- et de revoir les méthodes statistiques de comparaison.

Afin de répondre à la question fondamentale non abordée par la norme EN 12341, concernant le degré d'équivalence entre les méthodes gravimétriques de référence et les méthodes automatiques de mesure des PM10, un programme de mesurage gravimétrique des particules en suspension PM10 et PM2,5 coordonné par l'ADEME a été mis en place, l'EMD étant chargée d'une mission d'assistance aux AASQA relative au suivi technique, à la centralisation et au traitement des données.

## . CAMPAGNES DE MESURE

### Les participants

Deux séries de campagnes de mesure gravimétrique des PM10 , une en été 2001 et une en hiver 2001 / 2002, ont été réalisées dans 10 villes françaises pour permettre de comparer les mesures automatiques des PM10 réalisées à l'aide des appareils TEOM avec la mesure gravimétrique prise comme référence, et les mesures automatiques des PM10 et les mesures automatiques des PM2,5 .

D'autres campagnes avaient été réalisées auparavant , à Paris, Vitry s/seine (par Airparif et Ineris), et à Douai (par l'EMD); une partie des résultats correspondant ont été utilisés dans ce rapport.

Dans chacune des villes concernées, un analyseur automatique TEOM équipés d'une tête PM2,5 a été installé auprès d'un TEOM-PM10 déjà existant en zone URBAINE DENSE. Un préleveur sur filtre PARTISOL équipé d'une tête PM10 a été installé sur le même site. Chaque ville dispose d'une autre station équipée de deux TEOM, l'un équipé d'une tête PM2,5 et l'autre d'une tête PM10, mais sans préleveur sur filtre.

La tête PM2,5 retenue pour cette étude est la tête PM10 classique complétée du dispositif « Sharp Cut Cyclone SCC ». Les pesées des filtres des préleveurs PARTISOL ont été effectuées à l'aide d'un comparateur de masse automatisé par le laboratoire « masse » du Département Métrologie et Qualité de l'Ecole des Mines de Douai.

Les organismes impliqués dans ces campagnes sont listés dans le tableau 1.

**Tableau 1 : participants au programme pilote**

AASQA participantes	VILLES	Etat des campagnes
AREMALM	Lille	<b>Campagnes d'été et d'hiver réalisées</b>
ASPA	Strasbourg 1 et 2	
REMAPP	Rouen	
ALPA	Le Havre	
ORAMIP	Toulouse	
AIRMARAIX	Marseille	
ASCOPARG	Grenoble	
ATMO RHONE-ALPES	Lyon	Hiver 2002 annulée
AIRAQ	Bordeaux	Eté en 07/2002
ATMO-AUVERGNE	Clermont-Ferrand	Eté en 07/2002
AASQA associées	VILLES	
EMD	Douai	Campagnes 2001 / 2002
AIRPARIF	Paris-Vitry	Campagnes 2000 / 2001

## Les mesures automatiques

Afin de répondre aux recommandations de la directive, des campagnes de mesure parallèles des particules PM10 et PM2,5 ont déjà été initiées par une grande majorité des associations de surveillance, dont celles participant à cette opération pilote.

Les appareils TEOM PM10 et PM2,5 sont en fonctionnement permanent avant, pendant et entre les campagnes gravimétriques. Ainsi, une masse de données issues des mesures automatiques est disponible et peut être utilisée dans le cadre du programme pilote, d'autant plus que, indépendamment des campagnes de mesure gravimétrique, dans chaque ville deux stations sont déjà impliquées dans le programme de mesures automatiques.

Les travaux EMD-LCSQA 1999 ont servi de base de travail pour le contrôle de l'étalonnage des analyseurs en continu. Des contrôles des débits d'échantillonnage ont été réalisés par les associations qui l'ont souhaité avec l'assistance de l'EMD.

## Les mesures gravimétriques

### Principe

Dans le cadre des recommandations européennes sur la mesure des particules,

*« il est conseillé aux Etats Membres d'entreprendre des mesures en parallèle entre méthode automatique et méthode de référence sur au moins **2 sites** par Etat Membre, ou région de l'Etat Membre dans le cas où des facteurs tels que la température, l'humidité relative, la composition de l'aérosol sont soumis à variation ».*

Il est donc apparu indispensable que des campagnes nationales soient consacrées à l'échantillonnage sur filtre des PM10 afin de faire une comparaison avec des mesures simultanées à l'aide des TEOM-PM10. Elles ont été réalisées dans le courant de l'été 2001, et de l'hiver 2002.

### Protocole de pesée

La pesée centralisée des filtres des préleveurs séquentiels a été effectuée par le laboratoire « masse » du Département Métrologie et Qualité de l'Ecole des Mines de Douai.

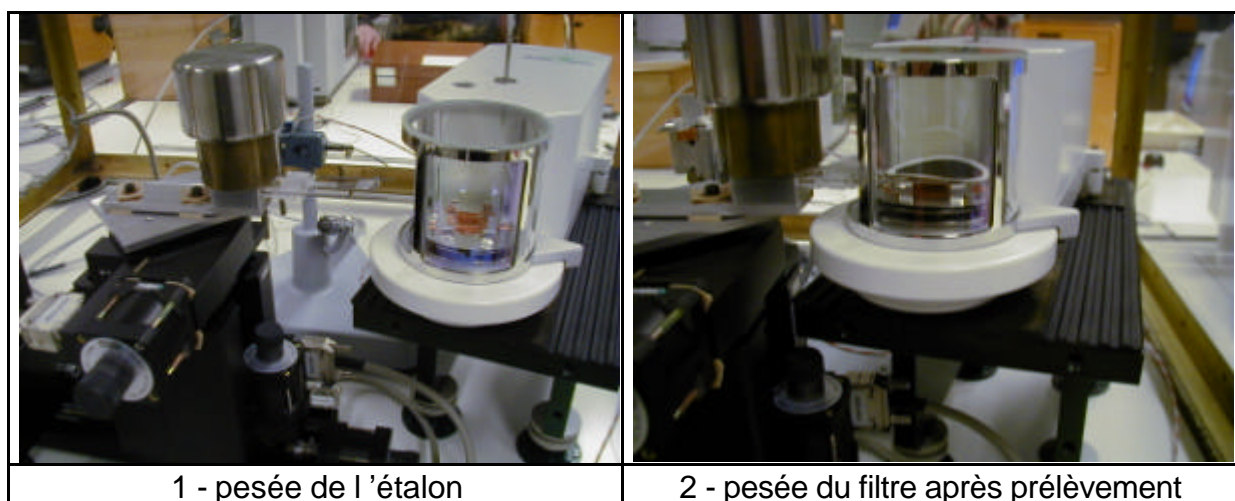
Compte tenu du nombre important de filtres, une station automatique de pesée a été mise au point. Elle est constituée d'un passeur automatique et d'un comparateur de résolution 0,1 µg. Le problème d'électricité statique lors de la pesée a été réduit. Un protocole de pesée a été rédigé.

Le banc de pesée est présenté sur la figure 1. L'ensemble est sous cage de verre dans un laboratoire climatisé ( $20 \pm 0,5$  °C) et ( $50 \pm 10$ ) % HR. La méthode de mesure gravimétrique est une méthode de comparaison à un étalon de valeur nominale (300 mg) en réalisant pour chaque filtre:

- Une première pesée de l'étalon
- Une première pesée du filtre (vierge ou après prélèvement)
- Une seconde pesée du filtre (vierge ou après prélèvement)
- Une seconde pesée de l'étalon.

Cette méthode permet de s'affranchir de la partie linéaire de la dérive. Chaque pesée est la moyenne de 5 acquisitions de mesure de la micro-balance.

Les deux parties de la figure 1 représentent les pesées de la masse de référence puis d'un filtre empoussiéré.



**Figure 1 : Procédure de pesée**

### Incertitude sur la méthode gravimétrique

L'évaluation de l'incertitude sur les pesées a comporté deux étapes :

- double-pesée par l'EMD de ses filtres « blancs-terrain » ayant accompagné chaque chargeur de 14 filtres à exposer dans les AASQA,
- pesées croisées de l'EMD avec l'INERIS sur **29 filtres**, d'abord les blancs puis les filtres exposés à Grenoble.

Les résultats ont été les suivants :

**Tableau 2 : écarts pesées (EMD2 - EMD1) des blancs terrain (exprimés en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )**

	Eté	Hiver	Global
<b>Moyennes</b>	<b>0,05</b>	<b>0,54</b>	<b>0,34</b>
<b>Mini</b>	<b>-0,66</b>	<b>-0,01</b>	<b>-0,66</b>
<b>Maxi</b>	<b>1,32</b>	<b>1,41</b>	<b>1,41</b>

Tableau 3 : pesées croisées EMD avec l'INERIS (29 filtres)

Ecart moyen en $\mu\text{g}/\text{m}^3$		Moyennes en $\mu\text{g}/\text{m}^3$		Maxima en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	
INERIS - EMD		INERIS	EMD	INERIS	EMD
Blancs	Exposés	<b>28,25</b>	<b>28,16</b>	<b>46,50</b>	<b>46,24</b>
<b>0,56</b>	<b>0,65</b>				
écarts tous > 0					

Etant donné les faibles écarts rencontrés, aucune variation temporelle éventuelle ou accidentelle des masses n'a été observée et aucune correction n'a été appliquée aux pesées des filtres exposés.

## . PROCÉDURES D'EXPLOITATION DES DONNÉES

### Données météorologiques

L'ensemble des résultats validés issus des TEOM et capteurs de paramètres météorologiques est communiqué par les AASQA à l'EMD en fin de chaque campagne.

Il était important que chaque AASQA fournisse des données météorologiques pour chaque journée de mesure de la température et la pression ; la prise en compte de ces deux dernières informations s'est avérée indispensable pour convertir les données issues des TEOM dans les conditions ambiantes, car elles n'étaient pas toutes exprimées dans les mêmes conditions de pression et de température.

**Note** : à titre d'exemple, si un TEOM à Clermont-Ferrand mesure  $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  dans les conditions réelles de  $20^\circ\text{C}$  et  $970 \text{ hPa}$ , il fournit un résultat de  $112 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  s'il est configuré dans les conditions  $0^\circ\text{C}$  et  $1013 \text{ hPa}$ , soit un écart de 12%.

### Choix des méthodes d'étude statistique

L'approche principale de cette campagne de mesure est de déterminer un facteur ou une fonction polynomiale de correspondance entre les mesures automatiques réalisées avec les TEOM et les mesures gravimétriques de référence réalisées avec les échantillonneurs Partisol.

Si la correspondance entre les méthodes est linéaire, l'équation d'une droite de régression peut être calculée. Parmi les diverses possibilités de régressions linéaires, le choix pour cette étude s'est porté sur la régression orthogonale Partisol = f(Teom) ,

forcée par le point origine « 0 ». La pente de cette droite est alors proposée comme éventuel facteur de correction.

La régression orthogonale classique (ne passant pas par l'origine) n'a pas été retenue par manque de signification scientifique.

Les rapports de valeurs peuvent également être utilisés ; en général, la moyenne des rapports des couples de données est un meilleur estimateur que le rapport des moyennes.

Les rapports considérés dans cette étude sont : TEOM PM2.5 / TEOM PM10 , et Partisol PM10 / TEOM PM10.

## . EXPLOITATION DES DONNÉES PM10

### Taux de fonctionnement

Les campagnes étaient initialement prévues pour des durées de 4 quinzaines, par station et par saison.

Pour diverses raisons essentiellement techniques, les stations n'ont pas toutes respecté ces durées, mais ont néanmoins pu assurer le minimum requis de 30 jours de mesures validés par campagne.

Le tableau ci-contre indique le nombre total de jours validés par station, et en global dont 637 jours en hiver.

**Tableau 4 : Taux de fonctionnement**

VILLES	nb val
Bordeaux	84
Clermont-F.	84
Douai	139
Grenoble	85
Le Havre	112
Lille	80
Lyon	29
Marseille	56
Paris 18	55
Rouen	112
Strasbourg-Ce	98
Strasbourg-Clé	108
Toulouse	56
Vitry-sur-seine	56
<b>Bilans</b>	<b>1154</b>

### Résultats généraux

Avant d'entreprendre la détermination d'un facteur ou d'une relation de correspondance éventuelle entre des résultats de mesure parallèles supposés à priori différents, il est apparu intéressant d'observer l'ampleur des écarts à éventuellement corriger.

### Degré de comparabilité entre Teom et Partisol

On a constaté sur 1154 groupes de données (nb de jours x nb de stations) que :

- pour **73%** des groupes, les écarts (Partisol - Teom) en PM10 sont compris entre  $-5$  et  $+5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ , et dont **1/3** sont négatifs, les résultats fournis par les Teom étant alors un peu supérieurs à ceux fournis par les Partisol ;
- ces 73% sont répartis temporellement sur **87%** des jours surveillés en été et **61%** des jours surveillés en hiver ;
- ces 73% sont répartis spatialement sur **73%** des jours surveillés dans la moitié sud de la France et aussi **73%** des jours surveillés dans la moitié nord.

**Note** : la séparation entre le nord et le sud s'est faite arbitrairement à partir de la situation des participants ; une ligne Nantes-Besançon schématise à peu près cette découpe.

Il apparaît que les cas où les Partisol et les Teom donnent des résultats similaires (écarts  $< 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), interviennent plus en été qu'en hiver (87% contre 61%). L'implantation géographique « Nord / Sud » des stations ne semble pas avoir une influence (même pourcentage d'observations).

**Tableau 5 : répartition des valeurs de pointe**

On a constaté sur les 316 groupes de données (**27%** du total) où les écarts (Partisol – Teom)  $> 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , que les jours correspondant se situaient plutôt en hiver et au nord.

Situations	nb de jours où : (Partisol – Teom) $> 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$
<b>SUD-HIVER</b>	<b>91</b>
<b>SUD-ETE</b>	<b>17</b>
<b>NORD-HIVER</b>	<b>158</b>
<b>NORD-ETE</b>	<b>50</b>

### **Les dépassements de la valeur limite $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$**

On a constaté sur 1154 groupes de données (nb de jours x nb de stations) que :

- le nombre de dépassements de la valeur limite en PM10 de  $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  fixée par la directive observés **avec les Partisols**, est sur l'ensemble des campagnes de **82** sur un total de 1154 jours, soit **7,1%** des jours ;
- ces dépassements ont presque tous (80 sur 82), donné lieu à des écarts en PM10 (Partisol – Teom)  $> 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  et sont répartis comme suit :

d'une part :

- 16 pendant les 517 jours surveillés en été (soit 3,1%),
- 66 pendant les 637 jours surveillés en hiver (soit 10,4%),

d'autre part :

- 16 pendant les 394 jours surveillés en zone sud (soit 4,1%),
- 66 pendant les 760 jours surveillés en zone nord (soit 8,7%),

- les dépassements de la valeur limite ont donc été plus fréquents en hiver, et plutôt situés dans la moitié nord de la France ;

➤ les amplitudes des dépassements de la valeur limite selon la saison et la zone sont à peu près similaires comme le montre le tableau ci-dessous :

- Les moyennes des Teom sont de l'ordre de  $45 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ,
- Les moyennes des Partisol de l'ordre de  $63 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ,
- Et les rapports Partisol / TEOM tous proches de 1,4 .

**Tableau 6 : Les dépassements de la valeur limite journalière**

	nb de jours	nb dép Part. > VL	% jours Part. >VL50	moyennes TEOM	moyennes Partisol	moyennes P / T
<b>Total</b>	<b>1154</b>	<b>82</b>	<b>7,1</b>	<b>45,4</b>	<b>63,2</b>	<b>1,41</b>
Eté	517	16	3,1	46,1	62,3	1,36
Hiver	637	66	10,4	45,3	63,3	1,42
zone Nord	760	66	8,7	46,2	64,2	1,41
Zone Sud	394	16	4,1	41,8	58,8	1,40

### Deux classes de données PM10 : (Partisol-Teom) < ou > $5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

Les résultats précédents montrent qu'il existe deux classes de données PM10 selon que la différence (**Partisol - Teom**) est supérieure ou inférieure à  $5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  ; cette valeur est inspirée de la norme EN 12341 , où elle correspondait à la limite acceptée de répétabilité d'une méthode gravimétrique de référence dupliquée.

Les figures 2 et 3 suivantes montrent les relations linéaires obtenues en appliquant le principe d'une telle séparation à 12 stations. On conserve pour mémoire dans ces figures la même présentation des points été et hiver.

L'analogie entre les figures est assez évidente et montre qu'il faudrait traiter séparément les données selon leur degré de comparabilité et donc de ne pas corriger les 73% de données acceptées comme identiques dans ces campagnes de mesure.

Cependant, ce degré de comparabilité ne peut être connu que par l'existence d'une référence gravimétrique permanente ; compte tenu de l'homogénéité constatée entre stations d'une même ville, il semble qu'une référence permanente par région pourrait suffire à la connaissance des écarts.

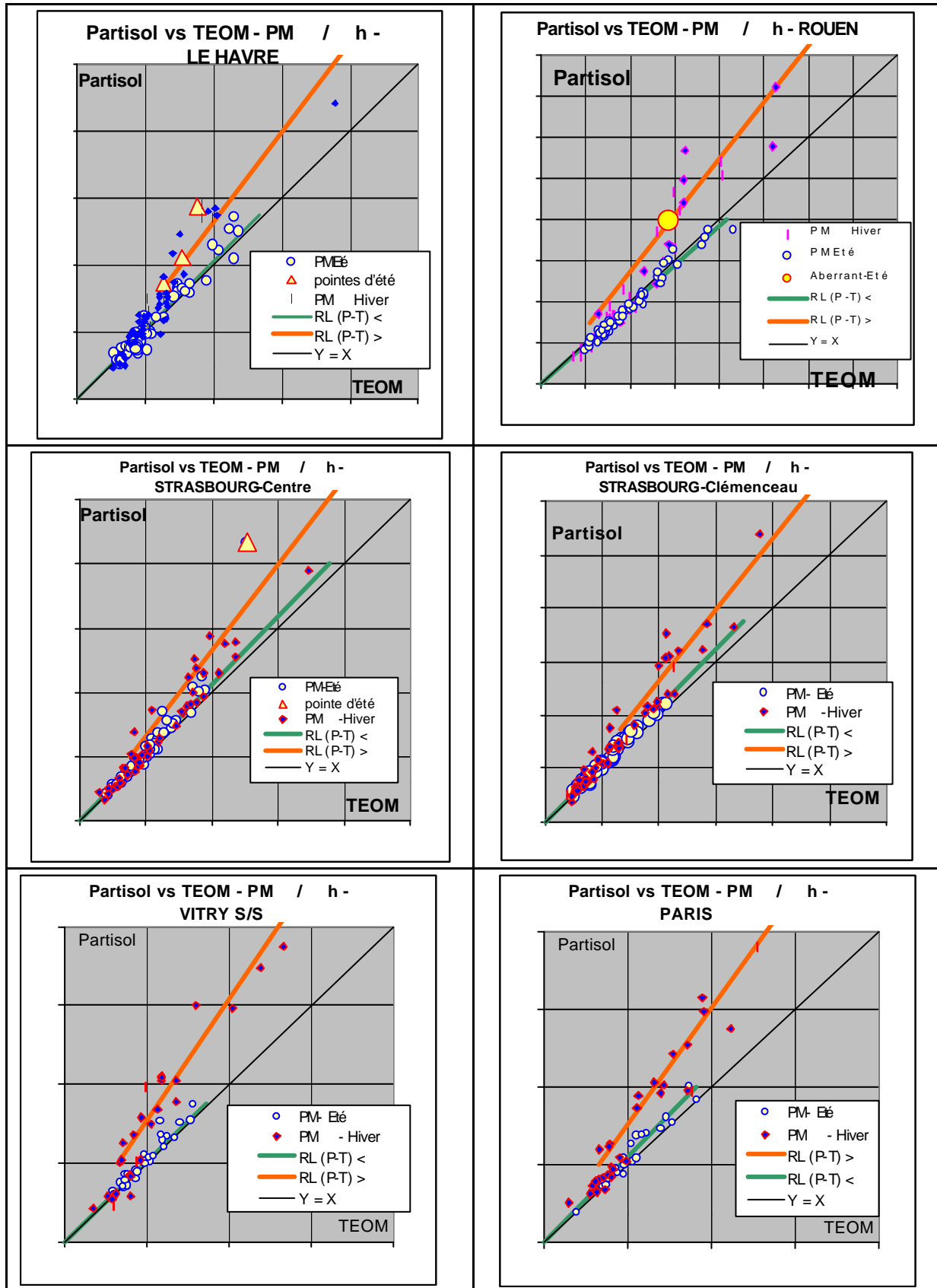


Figure 2 : Régressions séparées des données PM10 selon

écart  $(P-T) <$  ou  $> 5 \mu\text{g.m}^{-3}$

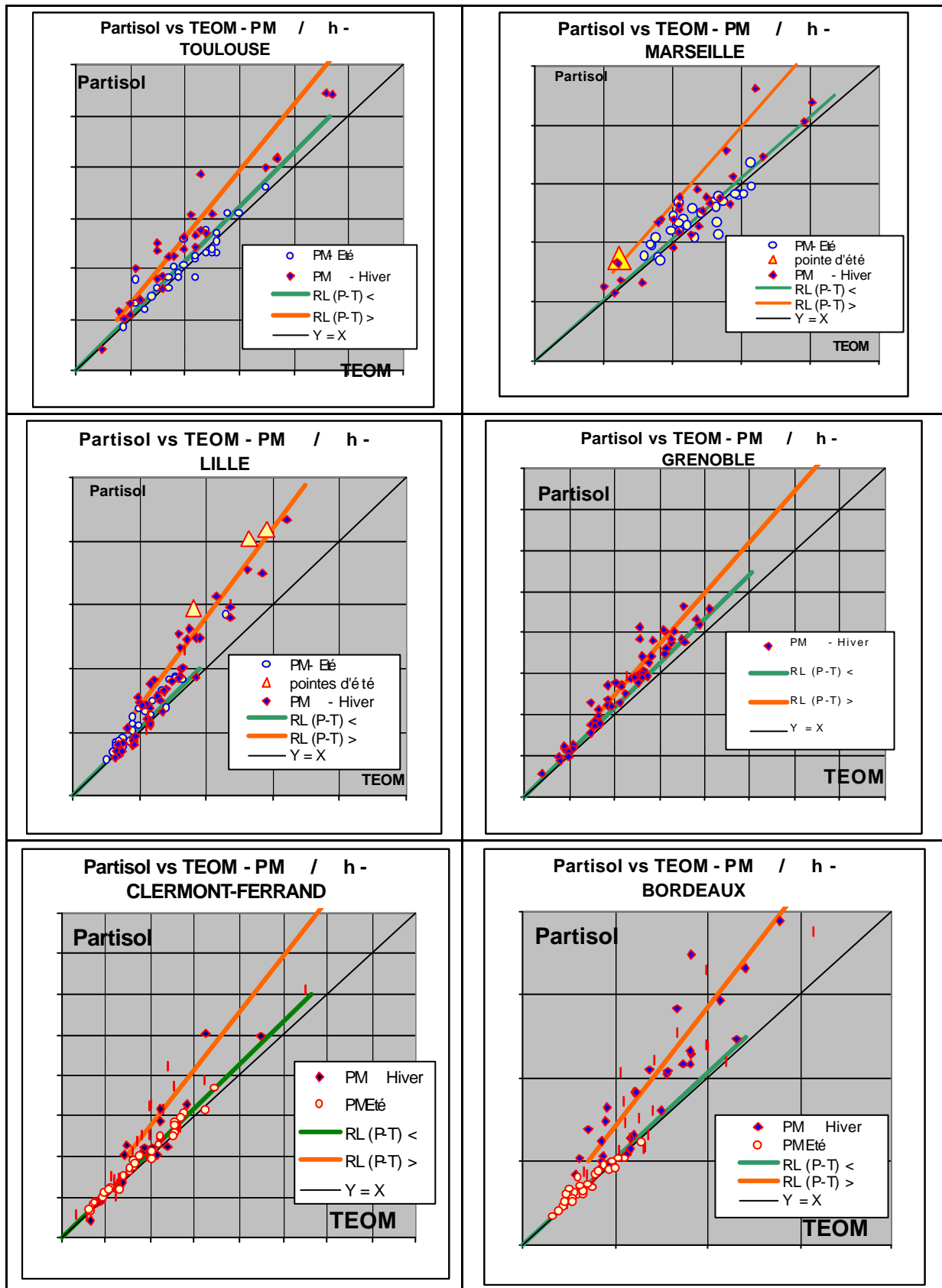


Figure 3 : Régressions séparées des données PM10 selon

écart (P-T) < ou >  $5\mu\text{g.m}^{-3}$

L'ensemble des pentes des 3 droites de régression orthogonales forcées par le point « zéro » obtenues par station dans les cas suivants :

$(P-T) < 5 \mu\text{g.m}^{-3}$  ,  $(P-T) > 5\mu\text{g.m}^{-3}$  et totale par station apparaît dans la figure 4 ci-dessous.

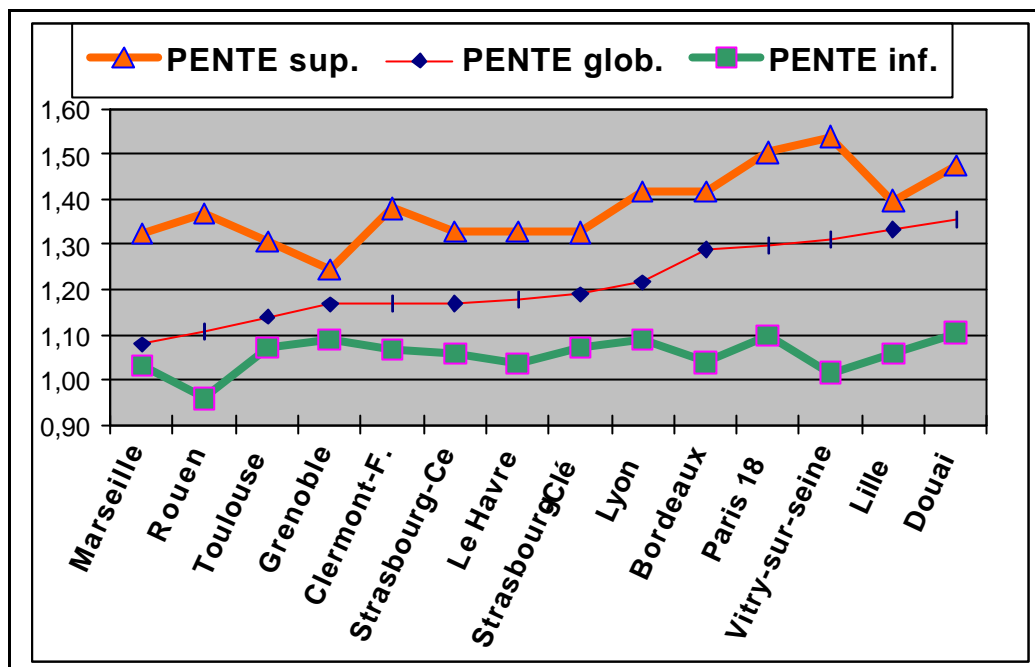


Figure 4 : bilan des régressions par groupe selon comparabilité

Les relations moyennes sur l'ensemble des données selon les écarts (P-T) sont les suivantes :

$$\text{Partisol} = 1.384 \text{ Teom} \quad [(P-T) > 5]$$

$$\text{Partisol} = 1.221 \text{ Teom} \quad (\text{Global})$$

$$\text{Partisol} = 1.053 \text{ Teom} \quad [(P-T) < 5]$$

Il apparaît que toutes les valeurs Teom **pourraient être corrigées au minimum** par un facteur de **1,053** .

On ne peut imaginer effectuer une correction sur l'ensemble des données avec le facteur supérieur 1,384 alors que seulement 27% des données seraient concernées.

Une piste possible serait d'utiliser la pente globale correspondant aux 1154 données (1,221), ou celle obtenue pour chaque station.

### Etude des facteurs de correction selon la saison

Le tableau 7 présente la liste des facteurs de correction calculés par saison et par station de mesure, et pour l'ensemble des stations.

**Tableau 7 : étude des facteurs de correction selon la saison**

VILLES	PENTE Eté	PENTE Hiver	écarts %
Rouen	0,937	1,221	+/-13.1
Bordeaux	1,003	1,322	+/-13.7
Marseille	1,024	1,129	+/-4.9
Toulouse	1,028	1,226	+/-8.8
Le Havre	1,042	1,253	+/-9.2
Vitry-sur-seine	1,048	1,494	+/-17.6
Clermont-Ferrand	1,050	1,209	+/-7.0
Strasbourg Clémenceau	1,059	1,263	+/-8.8
Strasbourg Centre	1,070	1,174	+/-4.6
Paris 18	1,083	1,410	+/-13.1
Lyon	1,088	1,221	+/-5.8
Grenoble	1,130	1,203	+/-3.1
Lille	1,185	1,271	+/-3.5
Douai	1,295	1,398	+/-3.8
<b>Ensemble des stations</b>	<b>1,116</b>	<b>1,286</b>	<b>+/-7.1</b>

On peut noter la diversité des facteurs, croissant en été de 0,937 à Rouen jusqu'à 1,295 à Douai. Les facteurs en hiver atteignent 1,410 et 1,494 en Ile-de-France. Cependant, les écarts relatifs entre les facteurs d'hiver et d'été sont globalement inférieurs à 10% et permettent de ne pas retenir l'hypothèse de facteurs saisonniers selon les recommandations du groupe d'experts européens (cf chap1).

### Etude des facteurs de correction selon la zone Nord et Sud

La découpe du territoire français en deux zones Nord et Sud est encore moins probante que la séparation entre deux saisons ; en effet, l'étude non détaillée ici montre que les facteurs calculés sur l'ensemble des stations sont assez voisins et ne sont que **1,238 dans la zone Nord et 1,185 dans la zone Sud**, la séparation arbitraire des zones étant une ligne reliant Nantes à Besançon.

### Equation de correction des données PM10 issues des TEOM

Dans le cas où la fonction Partisol=f(Teom) n'est pas linéaire, une équation de type polynomial peut être utilisée. Les préconisations liées à la directive ne précisent pas de règle de détermination d'équation. La méthode proposée consiste à rendre le facteur de correction croissant avec la concentration mesurée par le Teom .

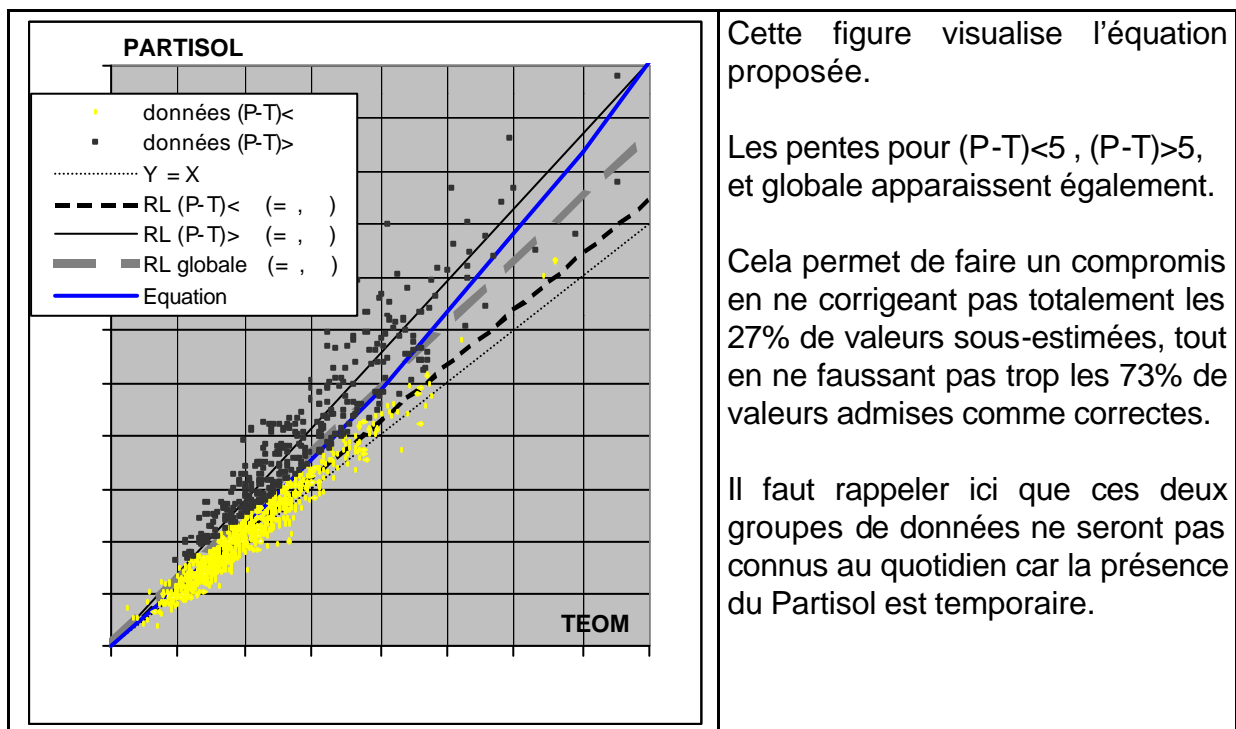
Quelle que soit la concentration, le facteur de correction sera au minimum 1,053 (cf 4.3) ; il est augmenté progressivement de « **+a\*Teom** » de telle manière qu'il ait la valeur du facteur global 1,221 (cf 4.3) à la concentration :

**Teom = VL50 / 1,221 = 41  $\mu\text{g.m}^{-3}$** , ainsi toute valeur d'un Teom supérieure à 41  $\mu\text{g.m}^{-3}$  étant un dépassement potentiel de la valeur limite VL=50  $\mu\text{g.m}^{-3}$ , sera corrigée au-delà de VL.

$$F = \text{Teom.Corr}/\text{Teom} = 1.053 + a * \text{Teom}$$

on calcule 
$$a = \frac{(1.221 - 1.053)}{50/1.221}$$

$$\text{Teom.Corr.} = 1.053.\text{Teom} + \frac{(1.221 - 1.053)}{50/1.221}.\text{Teom}$$



**Figure 5 : équation de correction des valeurs PM10 Teom (en  $\mu\text{g.m}^{-3}$ )**

## . EXPLOITATION DES DONNÉES TEOM PM2.5

### Résultats généraux relatifs aux PM2.5

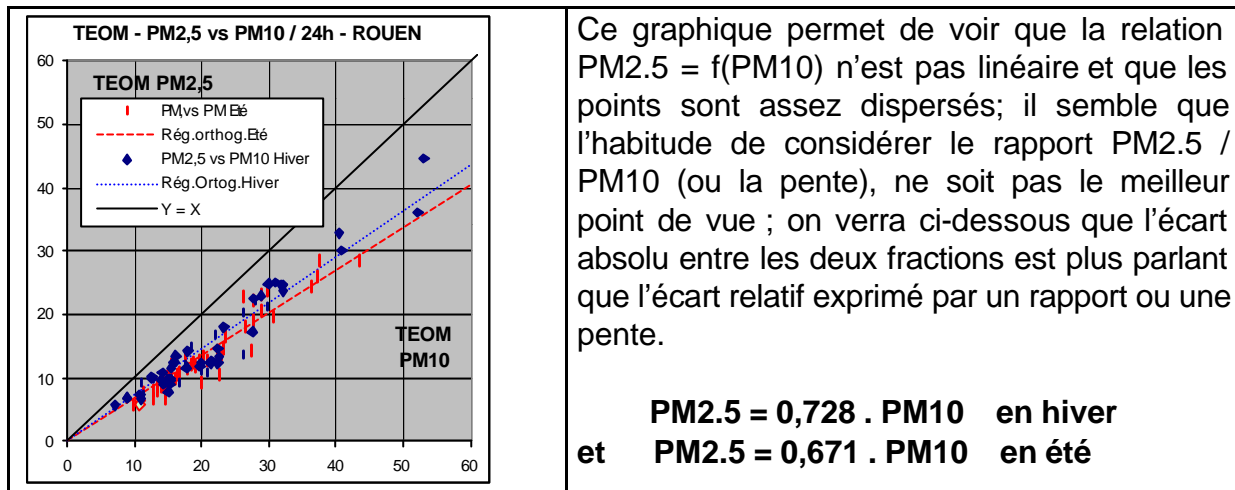


Figure 6 : comparaison des Teom PM2.5 et PM10 à Rouen(en  $\mu\text{g.m}^{-3}$ )

Les résultats de Rouen ont été pris ici comme exemple mais donnent sur le principe général une image assez fidèle de ceux de l'ensemble des autres stations détaillés dans le tableau suivant.

Tableau 8 : bilan des comparaisons entre TEOM PM2.5 et TEOM PM10

VILLES	Ecart TEOM (PM10 - PM2,5) moyens en $\mu\text{g.m}^{-3}$			Pentes forcées par « 0 » $PM2.5 = f(PM10)$	
	Global	Été	Hiver	Pente Été	Pente Hiver
Bordeaux	6,2	5,0	6,8	0,643	0,811
Clermont-Ferrand	4,1	1,1	5,6	0,643	0,688
Douai	7,6	8,3	7,1	0,628	0,672
Grenoble	7,2	8,7	6,5	0,705	0,706
Le Havre	8,6	8,3	9,0	0,626	0,662
Lille	9,3	10,3	8,8	0,582	0,661
Lyon	6,4	5,7	8,5	0,733	
Marseille	8,1	9,0	7,1	0,617	0,689
Paris 18	6,7	6,8	6,6	0,689	0,721
Rouen	6,5	6,9	6,1	0,671	0,728
Strasbourg-Ce	7,6	7,4	7,7	0,660	0,705
Toulouse	6,8	6,7	6,8	0,671	0,660
Vitry-sur-seine	6,2	6,6	5,9	0,673	0,727
<b>Bilans</b>	<b>7,01</b>	<b>6,97</b>	<b>7,12</b>	<b>0,660</b>	<b>0,703</b>

Les pentes des régressions linéaires entre les PM2.5 et les PM10 sont globalement un peu plus élevées en hiver (présence plus importante de PM2.5), mais le point important est que les écarts absolus moyens entre les deux fractions granulométriques sont

assez voisins entre les différentes villes, tous inférieurs à  $10 \mu\text{g.m}^{-3}$ , et pratiquement égaux entre le global et les deux saisons.

### Fraction granulométrique intermédiaire

L'écart entre les PM10 et les PM2.5 d'un couple de mesures parallèles correspondent à la fraction granulométrique intermédiaire dite des « grosses particules » située entre 2,5 et 10 micromètres. Cette fraction a peut-être une origine plus locale que les PM2.5 .

Le tableau 8 a mis en évidence une faible variabilité de la concentration de cette fraction. La figure 7 montre que la distribution des données est resserrée autour de la moyenne générale  $7,2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  , et seulement 16,5% des valeurs (190 valeurs sur 1154) dépassent  $10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  .

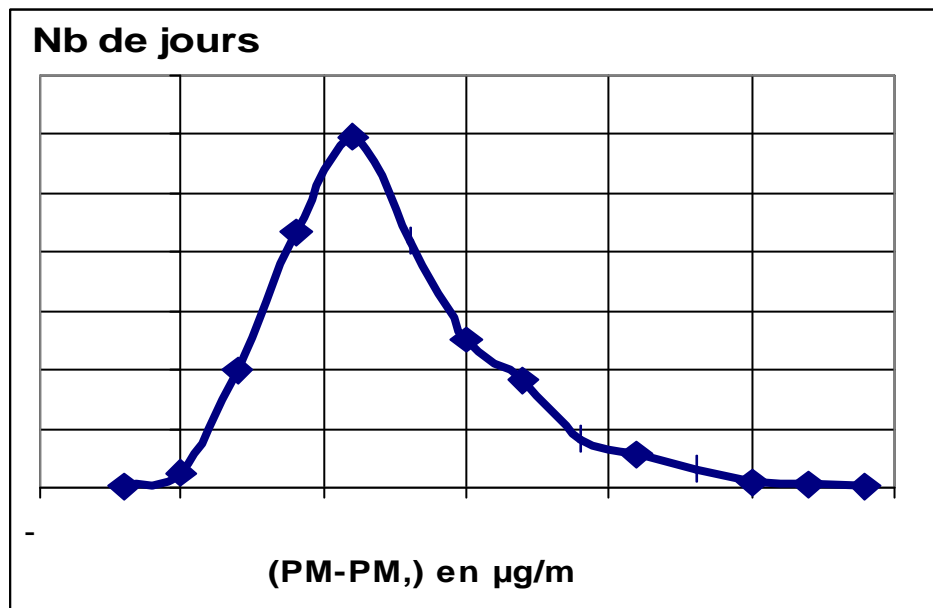


Figure 7 : Distribution des données de la fraction intermédiaire (PM10-PM2.5)

### Etude parallèle des séries de données

Dans la ville du Havre prise comme exemple, le graphique de la figure 8 suivante présente pour les deux saisons : été puis hiver, avec un tri dans l'ordre croissant des écarts ( $\text{PM10}_{\text{Partisol}} - \text{PM10}_{\text{Teom}}$ ), les évolutions de :

- ( $\text{PM10}_{\text{Partisol}} - \text{PM10}_{\text{Teom}}$ )
- PM10 Partisol pris comme référence,
- PM10 Teom automatique,
- PM2.5 Teom automatique,
- La fraction granulométrique intermédiaire Teom(PM10-PM2.5).

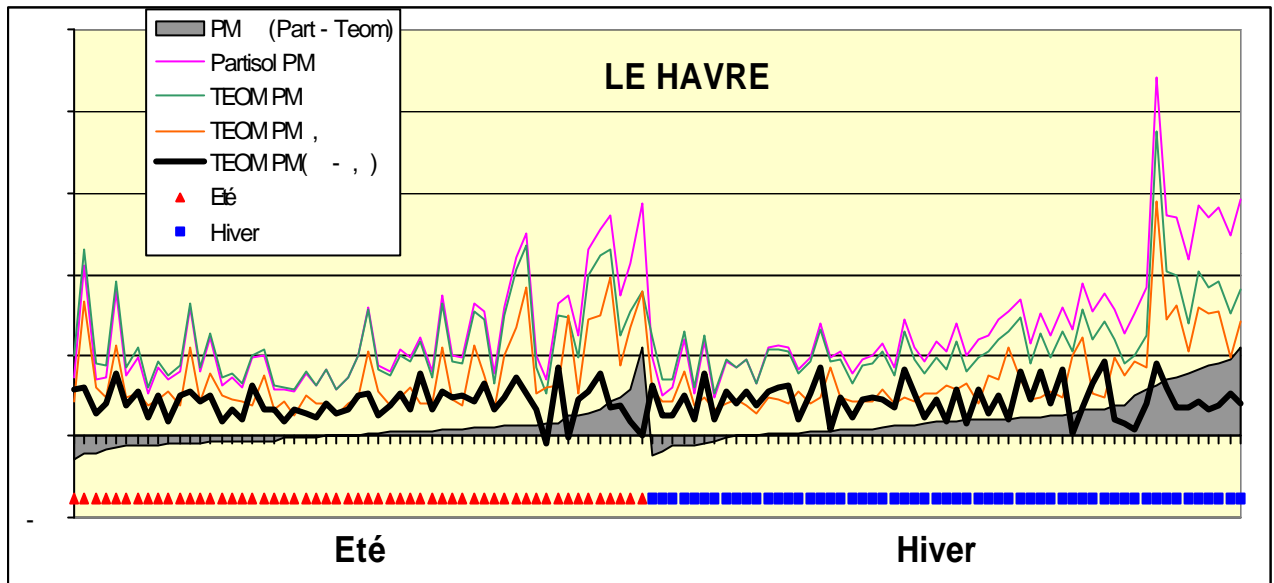


Figure 8 : étude parallèle des séries de données (en  $\mu\text{g.m}^{-3}$ )

Ce graphique apporte une image qui confirme les résultats exposés précédemment :

- la répartition des jours où « **PM10 Partisol = PM10 Teom** » se fait sur les deux saisons,
- les écarts notables en PM10 (Partisol-Teom) sont plutôt liés aux pointes,
- mais il existe des pointes PM10, surtout en été où (Partisol=Teom) donc sans perte de matière semi-volatile,
- les pointes sont un peu plus nombreuses en hiver,
- les composés semi-volatils sujets à des pertes, sont essentiellement contenus dans la fraction PM2.5,
- la fraction granulométrique intermédiaire (**PM10 - PM2.5**) n'est pas liée aux saisons, elle suit un peu les pointes, mais reste peu variable, soit  $8,6 \mu\text{g.m}^{-3}$  en moyenne au Havre.

## . DISCUSSION

### Etude de scénarios

On a vu que différentes possibilités de correction des données issues des appareils TEOM peuvent être envisagées :

- . le facteur de correction par défaut de 1,3 (cf chap.1),
- . un facteur issu de la régression linéaire classique utilisée dans la norme EN12341,
- . un facteur géographique selon la zone Nord ou Sud (cf 4.5),
- . un facteur saisonnier glissant si les facteurs été et hiver sont différents de +/-10%, par station ou sur l'ensemble des stations (cf 4.4),
- . un facteur issu de régressions orthogonales sur les données, soit par station ou sur l'ensemble des stations,
- . une relation non linéaire sur des ensembles de données, soit par station ou sur l'ensemble des stations.

Le tableau suivant présente dans le même ordre les résultats de ces différents scénarii sous la forme de moyennes des concentrations recalculées et de nombres de dépassements de la valeur limite induits par les diverses corrections des données issues des TEOM PM10.

**Tableau 9 : résultats des simulations**

		Moyennes en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	nb Dép VL=50
Etat initial	Partisol sur l'ensemble	26,1	82
	Teom brut sur l'ensemble	22,3 (-15%)	20 (-75%)
1	1,30 Guidance Report	29,0	91
2	1,50 EN12341	33,5	151
3	F Nord (1,238) + F Sud (1,185)	27,2	69
4	F Eté+F Hiv par station puis globalisé	26,5	68
	F Eté (1,116)+F Hiver(1,286) sur l'ensemble des stations	27,0	75
5	F par station puis globalisé	27,1	68
	F 1,221 sur l'ensemble	27,1	67
6	Equation de correction par station puis globalisé	25,9	68
	Equation de correction sur l'ensemble des stations	25,9	67

**L'état initial** met en évidence pour le Teom PM10 un défaut de 15% sur la moyenne et un défaut de 75% sur le nombre de dépassements par rapport à la référence Partisol.

**Le scénario 1** est à proscrire car il corrige trop à la fois les moyennes et les nombres de dépassements ; De toute façon, ces essais nationaux dispensent de l'utilisation de ce facteur « 1,3 » dit « par défaut ».

**Le scénario 2** est à proscrire car il corrige trop, à la fois les moyennes et les nombres de dépassements ; la régression linéaire obtenue :

**Teom = 0,665 Partisol +4,9** conduit à un facteur excessif de 1,50.

**Le scénario 3** : la comparaison selon une séparation arbitraire entre le Nord et le Sud n'a été réalisée que pour information ; les pentes obtenues 1,24 et 1,19 sont trop voisines pour être considérées comme vraiment différentes et donc l'aspect géographique ne semble pas avoir d'incidence.

**Le scénario 4** basé sur la séparation des saisons a été réalisé sur chaque station individuellement et sur les groupes de données globales ; les moyennes sont assez bien reconstituées (26,5 et 27,0  $\mu\text{g.m}^{-3}$ ) mais en léger excès par rapport au Partisol (26,1  $\mu\text{g.m}^{-3}$ ), et les nombres de dépassements 68 et 75 se rapprochent de ceux obtenus avec le Partisol (82).

Cependant, les pentes été et hiver sont différentes (1,116 et 1,286) et cela conduirait pour résumer à un calage gravimétrique épisodique de l'ordre de 1 mois sur 3, avec le calcul d'un facteur glissant. De plus, l'examen des données a montré que la différence inter saisonnière joue sur le nombre de pointes et non sur leurs amplitudes qui sont du même ordre de grandeur.

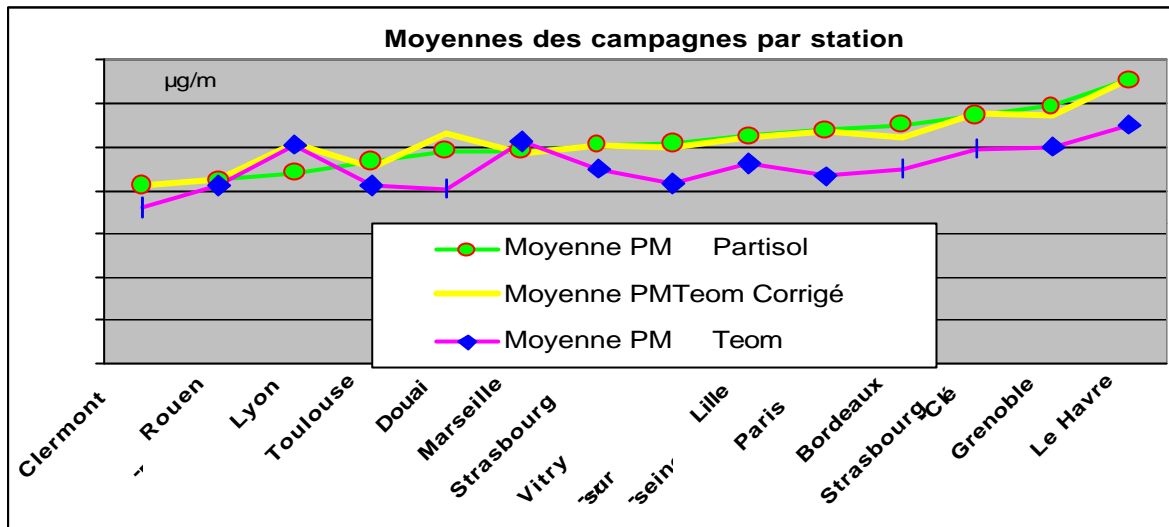
**Le scénario 5** est basé sur la régression linéaire globale d'ensembles de données, ville par ville et sur la totalité des mesures (pente = 1,221), ce qui conduit à une moyenne reconstituée de 27,1  $\mu\text{g.m}^{-3}$ , et à 67 et 68 dépassements selon le cas. Ces résultats sont similaires au scénario précédent.

**Le scénario 6** basé sur l'équation définie à titre d'exemple en 5.6 utilisée ville par ville et sur la totalité des mesures, conduit à des moyennes (25,9  $\mu\text{g.m}^{-3}$ ) presque égales à celle de la référence, et à 67 et 68 dépassements respectivement.

➤ **A priori, les scénarii 5 et 6 semblent être les plus applicables car ils considèrent toutes les villes de manière identique, et quelle que soit la saison, et reconstituent bien les moyennes des données issues des TEOM. Néanmoins, ils minimisent fortement les nombres de dépassements observés avec le Partisol.**

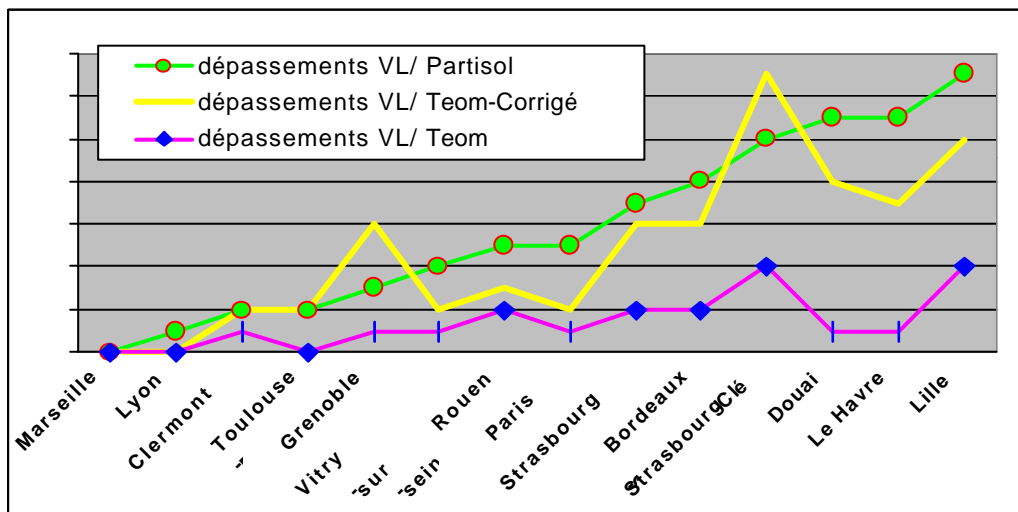
Les graphiques des figures 9 et 10 détaillent les résultats de la simulation 6 ville par ville.

La figure 9 montre que les moyennes en PM10 des TEOM corrigés se rapprochent très fortement des valeurs observées avec les Partisol.



**Figure 9 : Correction des moyennes PM10 TEOM à l'aide d'une relation polynomiale**

La figure 10 montre que les nombres de dépassements ne sont pas assez réévalués, sauf à Grenoble et Strasbourg-Clémenceau où c'est l'inverse.



**Figure 10 : Correction des nombres de dépassement de VL des PM10 TEOM à l'aide d'une relation polynomiale**

Il apparaît donc que les méthodes de correction des données n'ont pas le même effet sur les moyennes et sur les nombres de dépassement de la valeur limite : si les moyennes sont bien corrigées, les nombres de dépassements sont sous-estimés et vice-versa.

- **On peut donc s'interroger sur le choix du résultat à privilégier, moyenne ou nombre de dépassement.**

## Choix de la référence

On peut s'interroger sur le choix du Partisol comme référence gravimétrique.

Les travaux normatifs européens relatifs aux PM2.5 peuvent apporter des éléments de réponse sur le choix de la référence gravimétrique pour les PM10. En effet, le groupe CEN TC264 / GT15 prépare actuellement un projet de norme sur la détermination de références gravimétriques pour la mesure des PM2.5, assorti d'essais in situ en cours dans 9 villes européennes.

A ce jour, les résultats de Berlin, Duisburg, Vienne et Vredepeel (NL) sont disponibles. Les appareils utilisés dans ce contexte sont listés dans le tableau suivant.

**Tableau 10 : Préleveurs de PM2.5, candidats à la référence gravimétrique**

Appareils	Marques	Origines	débits
<b>Partisol</b>	R&P	USA	Lvs
<b>HDI</b>	Digitel	Suisse	Hvs
<b>LVS</b>	Derenda	Allemagne	Lvs
<b>Mini WRAC</b>	ITA-Hanovre	Allemagne	Lvs
<b>Raas-wins</b>	ESM-Andersen	USA	Lvs
<b>SEQ</b>	Leckel	Allemagne	Lvs

Le contexte étant le même que pour la mesure des PM10, à savoir que même si les méthodes candidates à la référence présentent de bonnes répétabilités, les valeurs moyennes obtenues par les diverses méthodes présentent des différences.

Le tableau 11 montre les facteurs de correspondance trouvés pour le Partisol par rapport à la moyenne arithmétique des résultats des autres appareils en valeurs journalières dans 4 villes européennes.

**Tableau 11 : Comparaison du Partisol avec d'autres préleveurs de PM2.5**

	VIENNE	BERLIN	DUISBURG	VREDEPEEL	Moyennes
Pentes des Rég.Orthogonales passant par "0"	0,958	0,962	0,996	1,009	0,981

L'examen de ce tableau montre qu'à Vienne et à Berlin, le Partisol donne des résultats plus faibles d'environ 4%, identiques à Duisburg et à Vredepeel, et donc légèrement inférieurs de **1,9%** en moyenne.

## Robustesse des tests statistiques

Les facteurs de correction éventuelle dépendent beaucoup du regard porté sur les données :

- selon les saisons (régression en Été « **1,116** », régression en Hiver « **1,286** »),
  - selon la zone (au Nord « **1,238** », au Sud « **1,185** »),
  - selon les villes (minimum à Marseille « **1,078** » et maximum à Douai « **1,356** »),
  - selon le mode de calcul (régression linéaire globale « **1,221** » ou moyenne des rapports « **1,152** »),
  - selon la référence gravimétrique choisie (cf CEN) : (minimum « **0,958** », maximum « **1,009** »).
- **Les facteurs de correction éventuelle sont donc très divers.**
- **On peut s'interroger sur la reproductibilité des facteurs de correspondance d'une année à l'autre.**

## . CONCLUSIONS

L'intercomparaison EMD / INERIS a montré que les protocoles de pesée étaient très satisfaisants. L'étude a permis d'apporter une homogénéisation des configurations des TEOM relatives à la température et à la pression ambiante.

Les résultats de cette étude ont apporté des informations importantes :

- les jours où les Partisol et les Teom donnent des résultats similaires (73% des écarts  $< 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), se situent plus en été qu'en hiver (87% contre 61% des jours correspondant à ces périodes) ; l'implantation géographique (Nord / Sud) des stations ne semble pas avoir une influence (même pourcentage d'observations, 73% des jours correspondant)
- pour les 316 groupes de données (27% du total) où les écarts (Partisol – Teom) sont supérieurs à  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , les jours correspondant se situent plutôt en hiver et au Nord ;
- les dépassements de la valeur limite ont été plus fréquents en hiver, et plutôt situés dans la moitié nord de la France et sont inclus dans les 27% ci-dessus;
- les amplitudes des dépassements de la valeur limite selon la saison et la zone sont à peu près similaires ;
- ces dépassements de la valeur limite (7,1% des jours) ont presque tous (80 sur 82), donné lieu à des écarts (Partisol – Teom)  $> 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ;

- les écarts relatifs (pentes) entre les PM2.5 et les PM10 sont globalement un peu plus élevés en hiver, mais les écarts absolus moyens sont assez voisins entre les différentes villes et tous inférieurs à  $10 \mu\text{g.m}^{-3}$  et pratiquement égaux entre les deux saisons ;
- la distribution des concentrations en « grosses » particules (PM10 – PM2.5) est resserrée autour de la moyenne générale  $7,2 \mu\text{g.m}^{-3}$ , et seulement 16,5% des valeurs (190 valeurs sur 1154) dépassent  $10 \mu\text{g.m}^{-3}$  ; la stabilité de cette fraction laisse à penser qu'une correction des PM2.5 plutôt que des PM10 serait plus appropriée ;
- un facteur de correction basé sur la pente de la régression linéaire globale ou sur une relation polynomiale croissante est à priori le plus applicable car il considère toutes les villes de manière identique quelle que soit la saison ; il reconstitue bien les moyennes des données issues des TEOM mais il minimise fortement les nombres de dépassements de la valeur limite ;
- on doit alors s'interroger sur le choix de la moyenne ou du nombre de dépassement qu'il faut privilégier ;
- le choix du Partisol comme référence gravimétrique qui a donné des résultats compris entre -4% et 0% par rapport aux autres échantillonneurs de PM2.5, peut être considéré comme acceptable pour les PM10.

Enfin, il apparaît difficile de choisir un facteur de correction sans connaître sa reproductibilité d'une année à l'autre, et donc sans avoir reconduit des campagnes PM10 similaires ; il faut de plus effectuer des essais comparatifs avec les jauges Béta en PM10 et sur les TEOM en PM2.5.

La poursuite de cette étude devra se focaliser sur ces derniers points.