

Note technique

Travaux financés par le ministère chargé de l'environnement

METHODE DE VALIDATION POUR LA MISE EN ŒUVRE DES ANALYSEURS AUTOMATIQUES DE PM PAR DIFFUSION DE LA LUMIERE

Retour d'expérience des tests de mise en
œuvre du FIDAS et définition d'une
méthode de validation

Amodeo Tanguy (Ineris)

Vérifié par MARCHAND-MARQUIS CAROLINE, le 11/07/2024

Approuvé par MORIN ANNE, le 09/09/2024

SYNTHESE

Le Référentiel Technique National (RTN) pour la surveillance de la qualité de l'air en France indique que la mise œuvre des granulomètres optique FIDAS (et par extension d'autres types d'analyseurs basés sur la diffusion de la lumière) doit être assujettie à la validation de tests de comparaisons avec un autre instrument de mesure pris comme référence (méthode de référence ou analyseur automatique déclaré conforme qui ne soit pas un analyseur basé sur la diffusion de la lumière). A la suite de la mise en application de cette exigence, les premiers retours d'expériences ont fait émerger la nécessité de disposer d'une méthodologie de validation de ces tests mais également de mieux appréhender les comportements de cet analyseur en fonction des conditions terrains.

Afin de répondre à ces objectifs, une base de données contenant des mesures conjointes du FIDAS avec un autre type d'analyseur a été constituée par le Laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air (LCSQA) en collaboration avec les Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA). Cette base contient l'ensemble des données obtenues dans le cadre des tests de mise en œuvre du FIDAS menés par les AASQA ainsi que les mesures réalisées dans le cadre de l'action réglementaire visant à contrôler en continu l'adéquation des analyseurs automatique à la méthode de référence, menée par le LCSQA.

Ce rapport présente une analyse de cette base de données à l'échelle du territoire national ainsi que la définition d'une méthode de validation des tests de comparaison réalisés sur un site de mesure.

ABSTRACT

The National Technical Standards for air quality monitoring in France indicates that the use of FIDAS optical particle size analysers (and by extension other types of other types of analyser based on light scattering) must be subject to the validation of comparison tests with another measuring instrument used as a reference (reference method or automatic analyser declared compliant and that is not an analyser based on light scattering). Following the implementation of this requirement, first feedbacks have highlighted the need for a set of guidelines for validating these tests, as well as a better understanding of the behaviour of this analyser under field conditions.

In order to meet these objectives, a database containing all the FIDAS measurements with another type of analyser has been compiled by the French National Reference Laboratory (LCSQA) in collaboration with the French air quality monitoring network (AASQAs). This database contains all comparison tests that were carried out as part of the FIDAS implementation tests carried out by the AASQAs, as well as the measurements taken as part of the regulatory action regulatory action aimed at continuously checking the suitability of automatic analysers to the reference method, carried out by the LCSQA.

This report presents an analysis of this database on a national scale as well as the definition of a method for validating the comparison tests carried out on a measurement site.

1. CONTEXTE

1.1 Contexte général

L'analyseur automatique FIDAS est un granulomètre optique qui mesure simultanément les fractions de taille $PM_{2.5}$ et PM_{10} (mais aussi PM_1 , PM_4 , PM_{tot}) ainsi que la concentration en nombre et la distribution en taille (de 180 nm à 18 μm) des particules dans l'air ambiant. Il possède également des coûts de fonctionnement plus faibles que d'autres analyseurs automatiques comme la microbalance oscillante TEOM-FDMS ou les jauges Bêta BAM 1020 ou MP101. Il a connu pour ces raisons un succès assez important depuis sa mise en conformité en 2017 puisqu'il représente, fin 2023, respectivement 30 % et 50 % des points de prélèvement PM_{10} et $PM_{2.5}$ à l'échelle nationale.

L'utilisation de ce type d'analyseur, basée sur la diffusion de la lumière, marque une évolution technologique pour la mesure réglementaire des concentrations de particules (PM) dans l'air ambiant. En effet, le principe de mesure de cette technologie consiste à calculer la concentration massique de PM (en $\mu g/m^3$) en convertissant la distribution en taille mesurée (Nb/cm^3) à l'aide d'un algorithme incluant un profil de densité des particules. Or, des questions légitimes se posent sur l'adaptabilité des hypothèses de densité pour l'ensemble des conditions rencontrées sur les sites de mesure.

Pour cette raison, la mise en conformité technique des FIDAS a été précédée dès l'origine par de nombreux tests terrain menés notamment dans le cadre des campagnes de suivi d'équivalence. Les résultats de ces tests ont permis de valider en 2017 la conformité technique des modèles FIDAS 200/200S/200E, pour la mesure réglementaire des PM_{10} et $PM_{2.5}$ en la limitant aux sites sous influence de fond et assujettie à la réalisation préalable d'essais de validation (avec résultats étendus à l'échelle régionale aux sites de même type), par comparaison avec la méthode de référence ou un analyseur déclaré conforme (basé sur un autre principe de mesure).

Au regard des informations issues du suivi d'équivalence des analyseurs automatique de PM et des retours d'expériences des utilisateurs, la Commission de Suivi (CS) « Métrologie/Assurance-Qualité, Contrôle Qualité » du Laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air (LCSQA) a étendue, en 2021, l'utilisation des FIDAS à tous les types de sites de mesure en confirmant la nécessité de réaliser des tests avant mise en œuvre tout en conservant l'extension des résultats à l'échelle régionale pour les sites de même typologie (hors influence industrielle).

Depuis 2017, le nombre des essais et les méthodes de validation étaient laissés à l'appréciation de chaque Association agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA), mais en 2021, le retour d'expérience a fait émerger la nécessité de disposer d'une méthode de validation harmonisée pour l'ensemble du dispositif. Le LCSQA a donc mené, en 2022 et 2023, un travail d'analyse de l'ensemble des données de comparaison réalisées par les AASQA depuis la mise en service du FIDAS dans le but de **1/ proposer une méthode de validation des tests de mise en œuvre, et 2/ mieux caractériser le comportement du FIDAS afin d'identifier ses conditions limites d'utilisation.**

Ce document présente la base de données qui a été constituée durant ce travail ainsi que la méthode de validation de tests de mise en œuvre qui a été élaborée.

1.2 Articulation avec l'action « suivi d'équivalence »

La demande de réalisation de tests avant mise en œuvre est renseignée dans le Référentiel Technique National (RTN) et leur validation est un préalable à l'installation des FIDAS sur site. Cette contrainte se juxtapose à l'action réglementaire nationale pluriannuelle « suivi d'équivalence » qui consiste à contrôler en continu l'équivalence des analyseurs automatique avec la méthode de référence. Les résultats du suivi d'équivalence tel qu'il est mené à l'échelle nationale sur un nombre restreint de sites et de conditions (météo, typologie, influence, sources ...) ne sont pas toujours en mesure de prédire et de documenter les comportements observés sur le FIDAS à une échelle très locale. La demande de réalisation de tests avant mise en œuvre vise donc à assurer que les instruments déployés au sein du dispositif sont utilisés dans des conditions qui leur permettent de rendre des résultats équivalents à ceux de la méthode de référence sans pour autant alourdir le dispositif du suivi de l'équivalence à l'échelle nationale. Ce besoin s'inscrit également dans le contexte des révisions du guide européen de démonstration d'équivalence (2010)¹ d'une part, et de la norme NF EN 16450 (2017)² d'autre part, laquelle confirme la nécessité de vérifier l'équivalence des analyseurs automatiques à la méthode de référence.

1.3 Portée du document

La demande de réalisation de tests avant mise en œuvre est renseignée dans le RTN à travers « la liste des instruments conformes pour la surveillance de la qualité de l'air »³. Les conditions d'application de ces tests, c'est-à-dire la durée ou encore le caractère systématique des tests, sont des points qui seront susceptibles d'évoluer dans le temps et seront inscrits dans le RTN. Le présent document s'attache **uniquement à détailler la méthodologie proposée pour la validation d'un test de comparaison sur un site de mesure.**

Il est important de noter que les tests avant mise en œuvre seront susceptibles d'être appliqués à d'autres analyseurs automatiques de type « granulomètre optique » lorsque ceux-ci seront reconnus conformes dans le RTN.

¹ [Guide de démonstration d'équivalence des méthodes de mesure de la qualité de l'air ambiant \(2010\).](#)

² NF EN 16450 : Air ambiant - Systèmes automatisés de mesurage de la concentration de matière particulaire (PM10; PM2,5)

³ [Liste des appareils conformes pour la mesure réglementaire de la qualité de l'air](#)

2. PRESENTATION DE LA BASE DE DONNEES

Afin de mieux appréhender le comportement du FIDAS sous différentes conditions et de travailler à l'élaboration d'une méthode de validation des tests de comparaison, une base de données, rassemblant l'ensemble des tests de validation déjà effectués par les AASQA ainsi que toutes les données disponibles issues du suivi d'équivalence, a été constituée.

Cette base de données compile des mesures journalières réalisées par FIDAS comparées avec des mesures d'un autre type d'analyseur automatique conforme pour la mesure réglementaire des PM (noté AMS pour *Automatic Measuring System*). Pour chaque paire de données (FIDAS + AMS), la localisation ainsi que la typologie et l'influence des sites de mesure ont été renseignées dans la base de données.

Cette base de données rassemblait fin 2023 : 12 989 paires de données journalières obtenues entre 2016 et 2023, sur 79 sites de mesures pour la fraction PM₁₀ ainsi que 8 699 paires de données journalières obtenues sur 42 sites de mesures pour la fraction PM_{2,5}. La quantité de tests réalisés est plus importante pour la fraction PM₁₀. Ceci traduit le fait qu'au sein du dispositif de surveillance la mesure des PM_{2,5} n'est pas toujours associée à la mesure des PM₁₀ puisque conformément à la directive Européenne le nombre de points de prélèvement PM₁₀ est plus important.

Les Tableaux 1 et 2 présentent le nombre de paires de données obtenues pour chaque fraction de taille, en fonction du type d'analyseur automatique utilisé pour la comparaison, ainsi que de la typologie et de l'influence des stations de mesure.

Tableau 1 : Nombre de jours de données FIDAS contenus dans la base de données. Détail du nombre de données pour chaque type d'analyseur automatique utilisé pour la comparaison.

	Fraction de taille	BAM 1020	MP101	TEOM 1400ab + FDMS 8500	TEOM-FDMS 1405-F	Total
Nombre de paires de données	PM10	5603	1364	3909	2113	12989
Nombre de paires de données (%)		43,1%	10,5%	30,1%	16,3%	100%
Nombre de sites de mesure		44	10	27	16	79*
Nombre de paires de données	PM2,5	3415	79	4148	1057	8699
Nombre de paires de données (%)		39,3 %	0,9%	47,7 %	12,1%	100%
Nombre de sites de mesure		22	1	18	12	42*

* certains sites regroupent plusieurs AMS

Tableau 2 : Nombre de paires de données en fonction de la typologie et de l'influence des stations de mesure

	Influence	Typologie	Nombre de données 24h	Nombre de données 24h (%)	Nombre de sites
PM₁₀	Fond	Urbain	7429	57,2%	47
	Fond	Péri-urbain	800	6,2%	8
	Fond	Rural régional	469	3,6%	3
	Fond	Rural national	1030	7,9%	4
	Fond	Rural proche Ville	477	3,7%	2
	Industrielle	Péri-urbain	976	7,5%	5
	Trafic	Urbain	1808	13,9%	10
PM_{2,5}	Fond	Urbain	6055	69,6%	29
	Fond	Péri-urbain	94	1,1%	1
	Fond	Rural régional	397	4,6%	3
	Fond	Rural national	419	4,8%	2
	Fond	Rural proche Ville	116	1,3%	1
	Industrielle	Péri-urbain	256	2,9%	1
	Trafic	Urbain	1362	15,6%	5

Les tests de mise en œuvre du FIDAS ont été majoritairement réalisés avec des BAM 1020 (jauge Bêta) et des TEOM-FDMS (microbalance oscillante). Ceux-ci représentent respectivement 43,1% et 46,4 % du nombre total de données pour la fraction PM₁₀ et 39,3% et 59,8 % pour la fraction PM_{2,5}. En PM₁₀, l'analyseur MP101 (jauge bêta) a été utilisé dans seulement 10,5% des comparaisons. Pour la fraction PM_{2,5}, le MP101 est très faiblement représenté car cet instrument n'est quasiment plus utilisé pour la surveillance de cette fraction de taille depuis 2022.⁴

L'ensemble des typologies de site et des influences est représenté dans la base de données mais avec une répartition inégale. En effet, les comparaisons ont été majoritairement réalisées sur des sites de typologie urbaine sous influence de fond, ces derniers représentant respectivement 57,2% et 69,6% de la base de données pour les fractions PM₁₀ et PM_{2,5}. Les sites de typologie urbaine sous influence trafic et les sites de typologie rurale sont respectivement représentés à hauteur de 13,9% et 15,2% pour la fraction PM₁₀, et 15,6% et 10,7% pour la fraction PM_{2,5}. Les sites de typologies péri-urbaines fournissent 13,7% des données de la base PM₁₀, dont 7,5% sous influence industrielle provenant de 5 sites de mesure. En PM_{2,5}, le nombre de données disponibles sur cette typologie est plus faible avec notamment un seul site de mesure sous influence industrielle.

⁴ [LCSQA 2019 : Synthèse des résultats du suivi de l'adéquation des analyseurs automatiques de PM à la méthode de référence](#)

La Figure 1 présente l'origine géographique des mesures présentes dans la base de données. A l'échelle de la France métropolitaine, des tests ont été réalisés sur l'ensemble du territoire. Les sites de typologie urbaine sous influence de fond sont répartis de façon relativement homogène sur le territoire pour les deux fractions de taille. La répartition des autres types de site est plus hétérogène. C'est notamment le cas pour les sites sous influence trafic moins présent pour la partie Est de la France, ou encore des sites de typologie rurale plus fortement représentés dans le nord de la France, notamment en $PM_{2.5}$. Les sites sous influence industrielle sont également concentrés autour de quelques villes et sont notamment peu présents en $PM_{2.5}$.

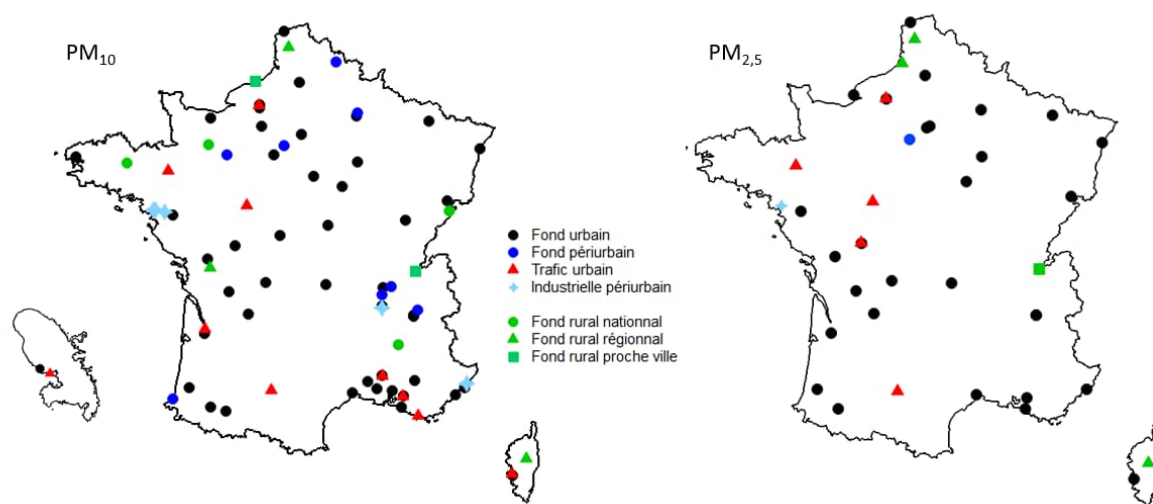


Figure 1 : Représentation de l'origine géographique des données pour les deux fractions de tailles PM_{10} (à gauche) et $PM_{2.5}$ (à droite)

La Figure 2 présente la distribution du nombre de données présentes dans la base, par niveaux de concentration, pour les deux fractions de taille. En PM_{10} , environ 92% des points de mesure sont inférieurs à $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et 0,7% des points dépassent $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$. En $PM_{2.5}$, environ 89% des points de mesures sont inférieurs à $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et 2,3% sont supérieur à $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Le choix des seuils de concentration est expliqué plus bas dans la section 3.2.

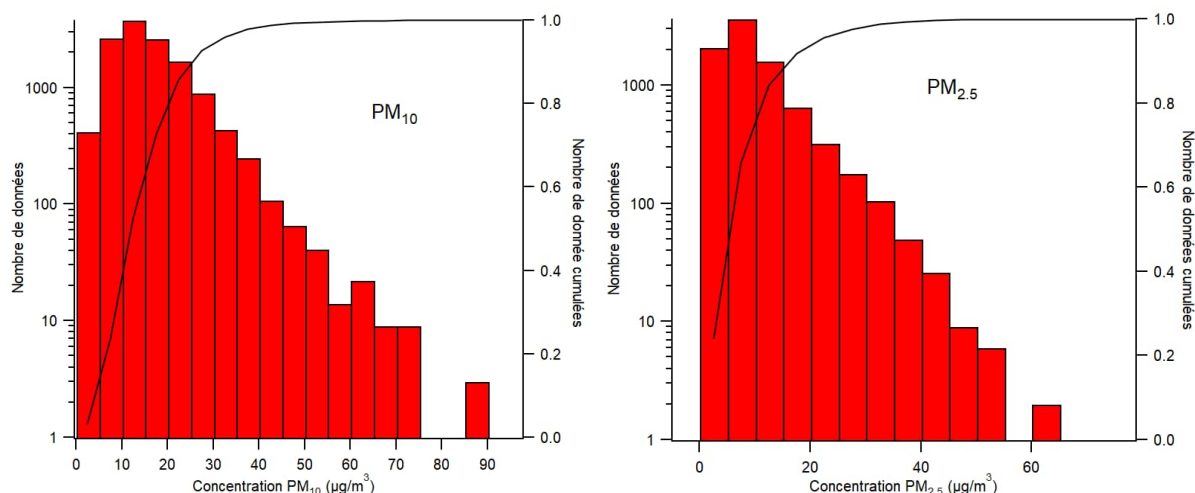


Figure 2 : Distribution du nombre de données par niveau de concentration pour les deux fractions de taille PM_{10} et $PM_{2.5}$

3. DEFINITION DES OUTILS STATISTIQUES

3.1 Calcul d'une incertitude inter-préleveur à partir de la variance des écarts de mesures entre les deux analyseurs

La norme NF EN 16450 encadrant l'utilisation et les performances requises des analyseurs automatiques des PM définit une incertitude inter-préleveur nommé U_{bs} de la manière suivante :

$$U_{bs}^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (x_{1i} - x_{2i})^2}{2n} \quad (1)$$

Où :

- x_{1i} et x_{2i} sont les mesures journalières des deux analyseurs.
- n le nombre de jour de mesures

Cette incertitude est définie de manière analogue à la variance de répétabilité de deux dispositifs de mesure, notée S_r , où de la variance interlaboratoires appliqué à deux laboratoires participants, notée S_L , tel que défini dans la norme NF ISO 5725-2⁵. Cet estimateur est notamment utilisé pour l'analyse des comparaisons interlaboratoires (CIL). C'est le cas, par exemple, dans la norme NF X 43-331⁶.

Dans le cas de deux instruments fonctionnant en parallèle, on peut exprimer la variance des écarts $b_i = (x_{1i} - x_{2i})$ entre les deux instruments pour chaque point de mesure i de la manière suivante :

$$Var(b) = \frac{\sum_i b_i^2}{n} - \left(\frac{\sum_i b_i}{n} \right)^2 = \frac{\sum_i (x_{1i} - x_{2i})^2}{n} - \left(\frac{\sum_i (x_{1i} - x_{2i})}{n} \right)^2 = \frac{\sum_i (x_{1i} - x_{2i})^2}{n} - (\bar{b})^2 \quad (2)$$

En injectant l'équation (1) dans (2), on obtient :

$$Var(b) = 2 U_{bs}^2 - (\bar{b})^2 \quad (3)$$

Ou encore :

$$SD^2 = RMSD^2 - (\bar{b})^2 \quad (4)$$

Avec :

- SD : Standard Deviation ou écart-type
- $RMSD$: Root Mean Square Deviation ou somme quadratique d'un biais moyen
- \bar{b} : biais moyen

Le U_{bs}^2 apparait dans le calcul de la variance sous la forme $2U_{bs}^2$. Ce terme représente la racine de l'erreur quadratique moyenne $RMSD^2$ qui est la somme quadratique d'un biais moyen ou systématique (noté \bar{b}) et d'une dispersion autour de la moyenne (ou écart-type noté SD_b).

Dans la norme NF EN 16450, la valeur maximale autorisée de U_{bs} pour un analyseur automatique de PM, calculée à partir de l'ensemble des données, est de $2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

⁵ NF ISO 5725-2 (2020) : Exactitude (justesse et fidélité) des résultats et méthodes de mesure — Partie 2 : Méthode de base pour la détermination de la répétabilité et de la reproductibilité d'une méthode de mesure normalisée

⁶ Qualité de l'air - Émissions de sources fixes - Détermination de l'intervalle de confiance d'une méthode de mesure en l'absence d'échantillon de référence par mesures parallèles simultanées.

3.2 Calcul d'incertitude à partir d'une régression linéaire orthogonale

L'incertitude réglementaire que doivent respecter les analyseurs automatiques de PM dans la directive 2008/50/CE⁷ du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant est de 25% à la valeur limite (VL). Elle est définie dans la norme NF EN 16450 de la manière suivante :

$$W = 2w = 2 \frac{U_{C=VL}}{VL} = 25\% \quad (5)$$

Où W est l'incertitude élargie ($k=2$), w l'incertitude non élargie, et $U_{C=VL}$ l'incertitude à la valeur limite (VL) en $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

La valeur limite journalière (VL) pour les PM_{10} est de $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ selon la directive 2008/50/CE. La norme NF EN 16450 propose l'utilisation de $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour la fraction $\text{PM}_{2,5}$. Les incertitudes à la VL journalière $U_{C=VL}$ correspondantes sont de 6,25 et $3,75 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

La norme NF EN 16450 définit une méthode de calcul de l'incertitude $U_{C=VL}$ à partir de la comparaison entre les mesures journalières d'un analyseur automatique de PM et celles de la méthode de référence. Elle est calculée à partir du résultat de la régression linéaire orthogonale de type $y=ax+b$ entre les deux méthodes, de la manière suivante :

$$U_{C=VL}^2 = \frac{RSS}{(n-2)} - u_{rm}^2 + [b + (a-1) * VL]^2 \quad (6)$$

Où

- $U_{C=VL}$ est l'incertitude calculée à la valeur limite (VL) ;
- VL est la valeur limite journalière, soit $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les PM_{10} et $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les $\text{PM}_{2,5}$;
- RSS est la somme des carrés résiduels résultants de la régression orthogonale $RSS = \sum_i (y_i - ax_i - b)^2$;
- a et b sont les coefficients de la régression linéaire orthogonale de type $y=ax+b$. Le terme entre crochets traduit le biais moyen entre les deux méthodes à la VL journalière ;
- n est le nombre de paires de données utilisées pour la régression ;
- u_{rm} représente l'incertitude aléatoire de la méthode de référence et est définie comme $U_{rm} = \frac{U_{bs}}{\sqrt{2}}$.

La norme NF EN 16450 s'attache à calculer l'incertitude $U_{C=VL}$ à la VL pour les deux fractions de taille à partir de l'ensemble du jeu de données, ainsi que pour un niveau de concentration supérieur ou égal à $0,6*VL$, soit 30 et $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$ respectivement pour les PM_{10} et $\text{PM}_{2,5}$.

Cette méthode de détermination de l'incertitude nécessite de disposer d'un nombre suffisant de points de mesure pour assurer que la régression linéaire traduise convenablement le comportement de l'instrument faisant l'objet du calcul. De plus, le calcul de l'incertitude étant réalisé à la VL, cette méthode nécessite de disposer d'un nombre suffisant de points de mesure autour de cette valeur. C'est pourquoi, la norme NF EN 16450 exige qu'un minimum de 80 points de données est nécessaire, dont 20 % supérieurs à $28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en PM_{10} (et $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en $\text{PM}_{2,5}$).

⁷ Directive 2008/50/CE du Parlement européen et du Conseil du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe

Enfin, la mise en application de l'équation (5) nécessite de connaître la valeur de U_{rm} des analyseurs automatiques de comparaison utilisés. Des valeurs de référence pour la fraction PM_{10} provenant des rapports d'essai d'adéquation réalisés par l'organisme de certification TÜV ou des tests d'équivalence réalisés par le Bureau Veritas au Royaume Uni, sont renseignés dans le Tableau 3. Il faut noter que pour des incertitudes à la VL proches ou supérieures à 25%, les contributions de ces incertitudes sont négligeables.

Tableau 3 : Valeur des U_{rm} pour chaque type d'analyseur automatique, pour la fraction PM_{10} , selon les tests de conformité du TÜV et les tests d'équivalence réalisés par le Bureau Veritas

Type d'AMS	U_{bs}	$U_{rm} = \frac{U_{bs}}{\sqrt{2}}$
BAM 1020 ⁸	1,22	0,86
MP101M ⁹	0,95	0,67
TEOM 1405-f ¹⁰	1,35	0,95
FDMS 8500 ¹¹	1,12	0,79
FIDAS ¹²	1,17	0,83

3.3 Distribution des écarts par niveau de concentration

L'utilisation des outils présentés en section 3.1 et 3.2 est détaillée dans la norme NF EN 16450 encadrant l'utilisation des analyseurs automatiques de PM et accompagnée de critères de validation. Cependant, il apparaît que ces outils ne sont pas toujours adaptés à des jeux de données ne présentant pas un nombre suffisant de points autour de la VL, ou bien présentant un nombre de points assez faible ou encore mal répartis sur l'axe des concentrations. C'est notamment pourquoi la norme NF EN 16450 prévoit un nombre minimum de données requis (cf. section 3.2).

⁸ TÜV report, n°936/21205333/A, 2006, Report on the suitability test of the ambient air quality measuring system BAM-1020 with PM10 pre-separator of the company Met One Instruments, Inc. for the measured component suspended particulate matter PM10.

⁹ TÜV report: 936/21240384/C, 2019, Report on the performance test of the MP101M ambient air quality measuring system for suspended particulate matter PM₁₀ manufactured by ENVEA.

¹⁰ TÜV report, n°936/21209885/B, 2011, Report on the suitability test of the ambient air quality measuring system TEOM 1405-f with PM10 pre-separator of the company Thermo Fisher Scientific for the component PM₁₀.

¹¹ Bureau Veritas, BV/AQ/AD202209/DH/2396,2006, Equivalence Programme for Monitoring of Particulate Matter

¹² TÜV report, n°936/21227195/B, 2015, Report on supplementary testing of the Fidas 200S respectively Fidas 200 measuring system manufactured by PALAS GmbH for the components suspended particulate matter PM₁₀ and PM_{2.5}

Or, dans le cas de la réalisation de tests de mise en œuvre par les AASQA, il est parfois difficile d'atteindre le nombre de jour de comparaison requis par la norme sur chaque fraction de taille car cela demanderait un temps de mise en œuvre trop important. Par ailleurs, l'obtention de points de mesure de concentration élevée est difficile, voir improbable pour certaines stations de mesure. La Figure 2, présentée au chapitre 2, illustre ce point en montrant par exemple que pour la fraction PM_{10} , seulement 101 points de mesure sont supérieurs à $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ soit 0,7 % de l'ensemble de la base de données et 959 points de mesures sont supérieurs à $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ soit 7,4 % de l'ensemble de la base de données. Pour la fraction $PM_{2,5}$, seulement 200 points de mesure sont supérieurs à $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ soit 2,3 % de l'ensemble de la base de données et 887 points de mesures sont supérieurs à $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$ soit 10 % de l'ensemble de la base de données.

L'objectif est donc de définir un outil statistique qui permette de confirmer ou non les résultats obtenus par les deux premiers outils détaillés ci-dessus, notamment dans les cas où le nombre ou la répartition des données ne sont pas suffisants.

L'approche statistique retenue est inspirée de celle utilisée par l'Agence de protection de l'environnement des Etats Unis (US EPA) pour comparer les performances des analyseurs automatiques avec la méthode de référence, détaillée dans le « programme fédéral d'évaluation des performances $PM_{2,5}$ » ($PM_{2,5}$ -PEP)¹³. Elle consiste à analyser les écarts de mesure en fonction de la concentration. Si l'approche retenue est analogue, les critères de validation retenus pour la validation des tests seront différents, pour les mêmes raisons que celles citées plus haut (relatifs à la taille du jeu de données) mais également pour ne pas rentrer en conflit avec les critères de qualité définis à l'échelle européenne.

La Figure 3 présente un exemple résultats de comparaison entre deux analyseurs automatiques de PM : un FIDAS et un TEOM 1405-F, sur une période de 3 mois. Le graphe du bas présente les mesures journalières des deux analyseurs en fonction du temps. La courbe en rouge sur le graphe du haut, présente l'évolution temporelle des écarts journaliers mesurés entre les deux instruments. Cet écart peut être caractérisé par une valeur moyenne assortie d'un écart-type ou bien par une distribution par quartile (ou boîte à moustache). Ces indicateurs sont présentés sur le graphe en haut à droite de la Figure 3. Dans cet exemple, l'écart (ou biais) moyen entre les deux instruments est de $-1,74 \mu\text{g}/\text{m}^3$, l'écart-type est de $1,12 \mu\text{g}/\text{m}^3$. L'espace interquartile mesuré indique que 50 % des écarts sont compris entre -1 et $-2,45 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Les écarts maximums sont de -5,20 et $1,50 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

¹³ PM2.5-PEP QAPP (EPA-454/B-22-004), 2022, Quality Assurance Project Plan for the Federal PM2.5 Performance Evaluation Program (PM2.5-PEP)

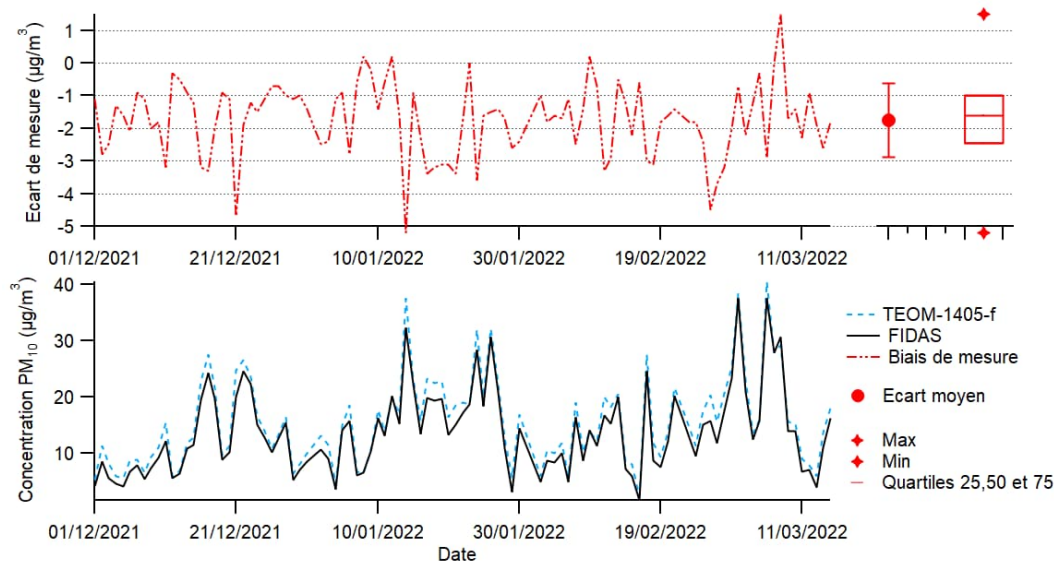


Figure 3 : Mesures PM_{10} journalières obtenus par un FIDAS et un TEOM 1405-F pendant une période de 3 mois (graphe du bas). Evolution temporelle de l'écart entre les deux instruments (graphe du haut). Calcul de l'écart moyen et de la distribution par quartiles (graphe en haut à droite).

L'écart moyen entre les deux instruments ainsi que la distribution de ses valeurs peuvent être également calculés par gamme de concentration. La Figure 4 présente les valeurs des écarts présentés plus haut mais cette fois par tranche de concentration. Une valeur moyenne et un écart-type ont été calculés pour chaque gamme de concentration de $10 \mu g/m^3$ (0-10, 10-20, ...).

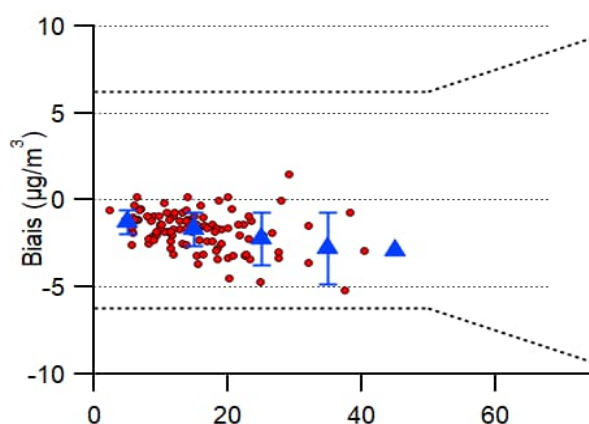


Figure 4 : Ecart (ou biais) de mesure entre les instruments en fonction de la concentration. Les valeurs moyenne des écarts ont été calculées par gamme de concentration de $10 \mu g/m^3$.

La méthode proposée consiste donc à comparer la distribution des écarts pour chaque niveau de concentration par rapport à des bornes supérieures et inférieures.

Dans la méthode $PM_{2.5}$ -PEP, ces bornes sont fixées pour chaque niveau de concentration, à savoir que le biais moyen relatif et sa variation relative ne doivent pas dépasser 10%.

Dans ce travail, afin de rester cohérent avec les deux premiers critères définis en section 3.1 et 3.2, les bornes sont extraites de la norme NF EN 16450 qui indique que l'écart maximal autorisé à la valeur limite (VL) est de $6,25 \mu g/m^3$ pour la fraction PM_{10} et $3,75 \mu g/m^3$ pour la fraction $PM_{2.5}$, correspondant à une incertitude élargie de 25 % à la valeur limite (VL) pour PM_{10} et $PM_{2.5}$.

Dans la réglementation, les bornes (ou écarts limites) sont caractérisés uniquement à la VL, il est proposé ici d'étendre ces écarts à toute la gamme de concentration en prenant :

- la valeur absolue (i.e. $6,25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ou $3,75 \mu\text{g}/\text{m}^3$) pour les concentrations inférieures à la VL ;
- la valeur relative (i.e. 25%) pour les concentrations supérieures.

Ainsi, sur la Figure 4, l'intervalle matérialisé par les lignes pointillées représente les écarts limites définies pour la fraction PM_{10} .

Le pourcentage de points de mesure situés en dehors des écarts limites peut être évalué directement en calculant le nombre de données qui sort de l'intervalle ou bien en utilisant le pourcentage prédit par la loi Normale. La Figure 5 représente une courbe de densité de probabilité gaussienne d'un résultat de mesure par rapport à une valeur de référence. Cette densité est caractérisée par un écart moyen (biais ou erreur systématique) et un écart-type (ou erreur aléatoire), respectivement noté \bar{x} et σ sur la figure. Dans une loi Normale, 68 % des données sont compris dans l'intervalle $\bar{x} - \sigma$ et $\bar{x} + \sigma$ ou encore 84% des données sont inférieurs à la valeur $\bar{x} + \sigma$.

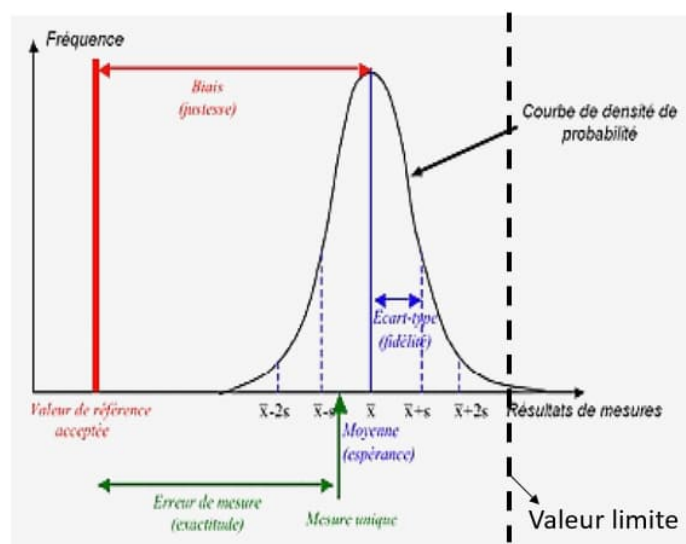


Figure 5 : Rôles respectifs des erreurs aléatoires et systématiques dans le cas d'une mesure unidimensionnelle. Représentation d'un écart limite.

Quand les points expérimentaux suivent une distribution gaussienne, on peut définir un intervalle de prédiction qui doit encadrer α % des points de mesures de la manière suivante :

$$[\bar{x} - t_{k,1-\alpha} \sigma ; \bar{x} + t_{k,1-\alpha} \sigma]$$

Où $t_{1-\alpha}$ est le quantile d'ordre $(1 - \alpha)$ d'une loi de Student à k degré de liberté.

L'objectif de qualité proposé dans ce travail consiste à s'assurer que les points de mesures sont distribués à l'intérieur des bornes (ou écarts limites) supérieure et inférieure définies précédemment. Pour cela, il conviendra de fixer un seuil d'alerte dès lors qu'une proportion importante des écarts mesurés s'écarte de l'intervalle définies précédement. Dans ce travail, la proportion, notée ci-dessus $(1-\alpha)$, est définie à 80 %.

4. ANALYSE DE LA BASE DE DONNEES

Ce chapitre présente l'analyse de la base de données à l'aide des critères définis dans le chapitre précédent. Les valeurs prises par ces critères ont été analysées en fonction de la fraction de taille mesurée PM_{10} ou $PM_{2,5}$, du type d'analyseur automatique utilisé pour le test de mise en œuvre, ou encore du type de site de mesure (typologie et influence). Enfin, une dernière partie présente les résultats pour chaque site de mesure.

4.1 Analyse des tendances globales des deux fractions de taille

La Figure 6 présente, pour chaque fraction de taille, la régression linéaire orthogonale entre l'ensemble des mesures FIDAS contenues dans la base de données et l'ensemble des mesures des analyseurs automatiques utilisés pour les tests de mise en œuvre.

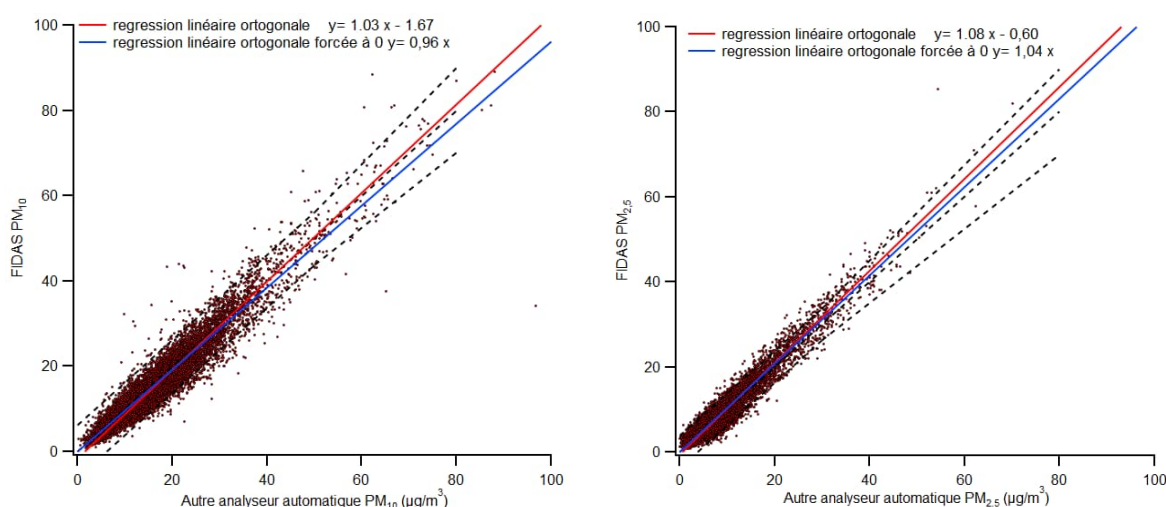


Figure 6 : Régression linéaire orthogonale entre l'ensemble des données Fidas contenues dans la base de données et l'ensemble des données des analyseurs automatiques utilisés pour la comparaison.

Le Tableau 4 reporte les résultats de la régression linéaire orthogonale, les valeurs de la variance inter-préleveurs U_{bs} ainsi que l'incertitude à la valeur limite $W_{(k=2)}$ définies dans les sections 3.1 et 3.2

Tableau 4 : résultats des comparaisons entre les mesures du FIDAS et celles d'un autre analyseur automatique.

	Nb de données	U_{bs}	Pente	Ordonnée à l'origine	RSS/(n-2)	Biais à VL	$W_{(k=2)}$ %	Pente force à l'origine	Correlation r
PM_{10}	12989	2,14	1,04	-1,72	8,01	0,41	10,72	0,96	0,96
$PM_{2,5}$	8699	1,49	1,08	-0,60	4,45	1,82	17,37	1,04	0,96

La Figure 7 présente, pour les deux fractions de taille, la moyenne et l'écart-type des écarts (ou biais) mesurés par niveau de concentration entre le FIDAS et les autres analyseurs automatiques utilisés pour la comparaison.

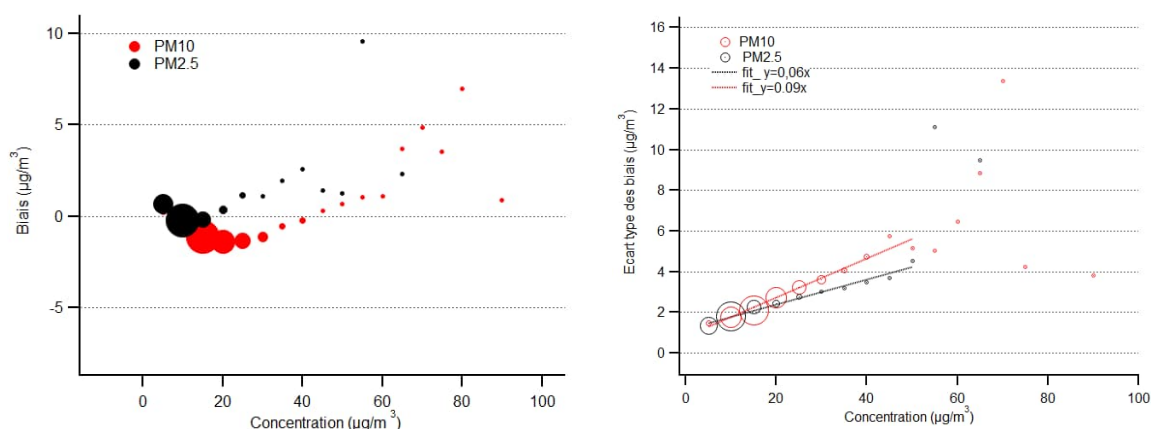


Figure 7 : Ecart moyen (à gauche) et écart-type du biais (à droite) en fonction des niveaux de concentration pour les deux fractions de taille PM₁₀ et PM_{2,5}. La taille des points représente le nombre de points de mesure disponible.

Pour les deux fractions de taille, les mesures entre le FIDAS et les autres analyseurs automatiques sont bien corrélées avec des facteurs de corrélation linéaires respectifs de 0,95 et 0,96 pour PM₁₀ et PM_{2,5}. Les incertitudes à la valeur limite (VL) $W_{(k=2)}$ sont inférieures à 25% avec des valeurs de 10,9% et 17,4 % respectivement en PM₁₀ et PM_{2,5}. Les valeurs plus faibles de la fraction PM₁₀ s'expliquent en grande partie par le fait que la VL est plus élevée qu'en PM_{2,5}. Les variances inter-préleveurs sont inférieures à 2,5 µg/m³ pour les deux fractions de taille. Cependant la valeur est plus faible pour la fraction PM_{2,5}. Ceci s'explique en partie par le fait que les niveaux de concentration sont plus faibles en PM_{2,5} ; mais pas uniquement, puisqu'on observe sur la Figure 7 des valeurs de dispersion légèrement plus importantes au-dessus de 20 µg/m³ pour la fraction PM₁₀. La régression linéaire indique que l'écart-type est environ égal à 9% du niveau de concentration en PM₁₀, contre 6% pour la fraction PM_{2,5}.

Il faut noter enfin, sur la Figure 7, que les écarts moyens en PM₁₀ sont légèrement négatifs, compris entre 0,2 et -1,4 pour les niveaux de concentration inférieur à 40 µg/m³, tandis que ceux pour les PM_{2,5} sont positifs, compris entre -0,20 et 2,6. Cela se traduit par des régressions linéaires forcées à l'origine de $y=1,04x$ en PM_{2,5} et $y=0,96x$ en PM₁₀. Les écarts pour les niveaux de concentration inférieurs à 5 µg/m³ sont dans les deux cas positifs, ce qui s'explique par le fait que les limites de détection du FIDAS sur les mesures 24h sont proches de zéro (0,001 selon le TUV), tandis que celles des autres analyseurs sont, selon les rapports du TUV, d'environ 0,8 pour le TEOM, 1,8 pour le BAM et 0,9 pour le MP. Au-delà de 50 µg/m³, les écarts sont positifs pour les deux fractions, cependant il faut noter qu'à ces concentrations, les moyennes sont calculées avec un nombre de points relativement faible.

4.2 Analyse par type d'instrument

La Figure 8 présente, pour chaque type d'analyseur automatique, la régression linéaire orthogonale entre les mesures FIDAS et celles des analyseurs automatiques utilisés pour les tests de mise en œuvre.

Les Tableau 5 et 6 reportent, pour chaque type d'analyseur, les résultats des régressions linéaires orthogonales, les valeurs de la variance inter-préleveurs U_{bs} ainsi que l'incertitude à la valeur limite $W_{(k=2)}$ définies dans les sections 3.1 et 3.2.

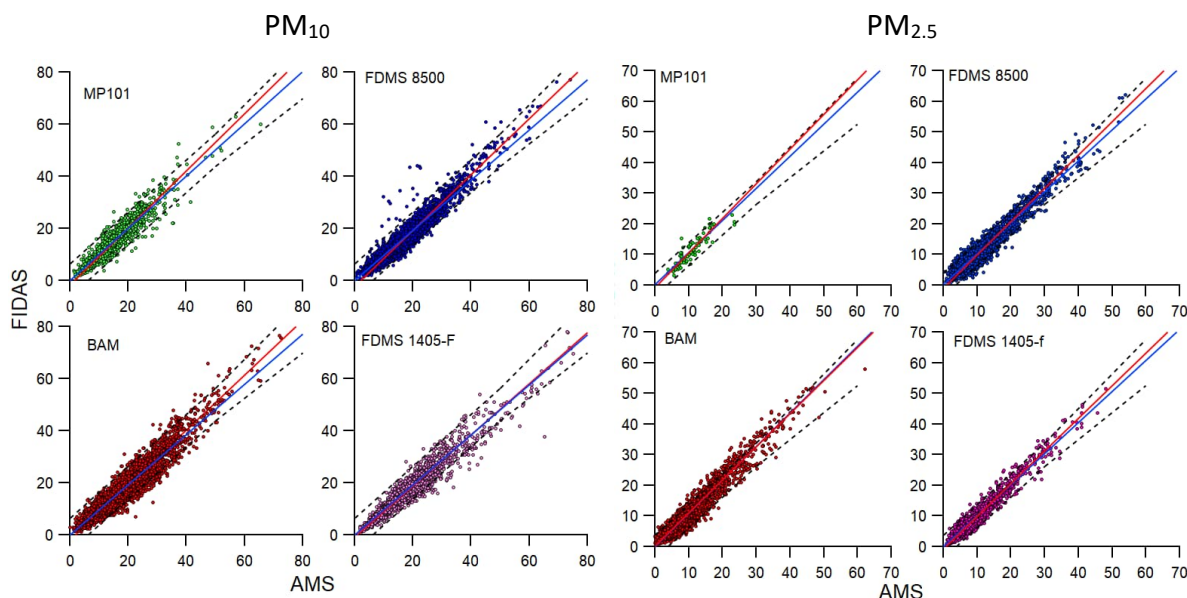


Figure 8 : Régression linéaire orthogonale entre les données Fidas contenues dans la base de données et chaque analyseur automatique utilisé pour les tests de comparaison.

Tableau 5 : Résultats des comparaisons entre les mesures du FIDAS PM_{10} avec chaque type d'analyseur automatique utilisés pour les tests de comparaison.

Type d'analyseur	Nb de données	B_{us}	Pente	Ordonnée à l'origine	RSS/(n-2)	Biais à VL	$W(k=2)$ %	Pente forcée à l'origine	Correlation r
BAM 1020	5603	2,19	1,06	-2,01	2,94	0,75	11,47	0,96	0,96
MP101M	1364	1,91	1,10	-1,56	2,73	3,20	16,34	1,008	0,94
FDMS 8500	3909	1,99	1,07	-2,31	2,61	1,41	11,19	0,96	0,96
FDMS 1405-F	2113	2,19	0,98	-0,85	2,82	-1,86	12,92	0,95	0,96

Tableau 6 : Résultats des comparaisons entre les mesures du FIDAS $PM_{2,5}$ avec chaque type d'analyseur automatique utilisés pour les tests de comparaison.

Type d'analyseur	Nb de données	U_{bs}	Pente	Ordonnée à l'origine	RSS/(n-2)	Biais à VL	$W(k=2)$ %	Pente force à l'origine	Correlation r
BAM 1020	3260	1,61	1,08	0,12	2,11	2,58	21,23	1,09	0,96
MP101M	79	1,49	1,13	-1,00	2,16	2,96	23,50	1,05	0,88
FDMS 8500	3835	1,50	1,09	-1,19	2,09	1,47	15,72	1,01	0,96
FDMS 1405-f	1525	1,18	1,07	-0,76	1,66	1,25	12,10	1,01	0,97

La Figure 9 présente, pour les deux fractions de taille et pour chaque type d'analyseur de PM, la moyenne et l'écart-type des écarts (ou biais) mesurés par niveau de concentration entre le FIDAS et les autres analyseurs automatiques ainsi que le nombre de données disponible.

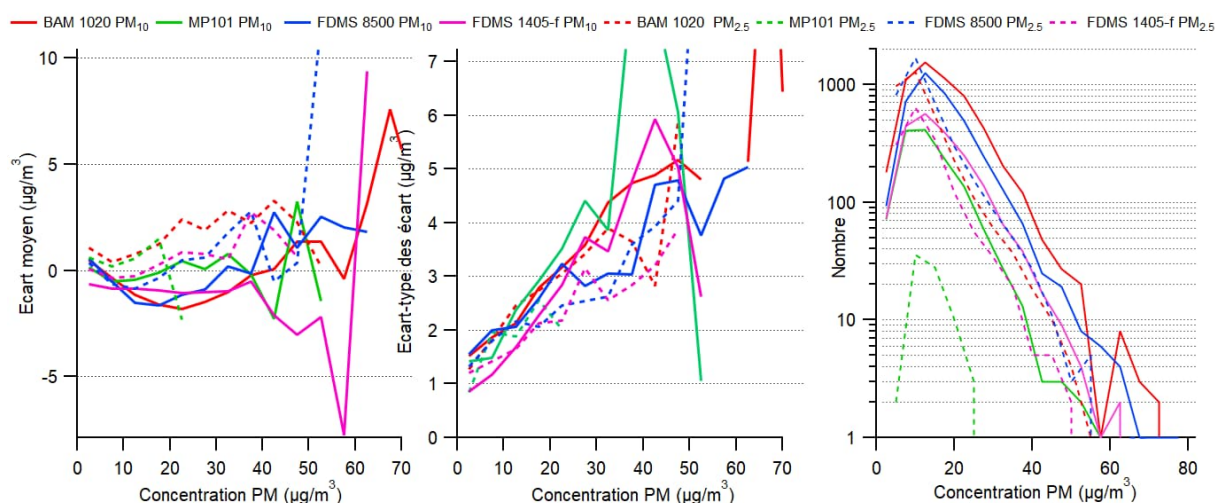


Figure 9 : Biais moyen (à gauche), écart-type du biais (au centre) et distribution du nombre de données (à droite) en fonction des niveaux de concentration pour les deux fractions de taille PM₁₀ et PM_{2.5}.

Pour les deux fractions de taille, les mesures entre le FIDAS et chaque type d'analyseur automatique présentent des facteurs de corrélation compris entre 0,94 et 0,96. Le facteur de corrélation pour le MP101 en PM_{2.5} n'est pas représentatif car le nombre de données est trop faible. Les incertitudes à la valeur limite $W_{(k=2)}$ sont toutes inférieures à 25% et les variances inter-préleveurs sont toutes inférieures à 2,5 µg/m³ pour les deux fractions de taille. De manière analogue avec les résultats de la section 4.1, ces valeurs sont toutes plus faibles pour la fraction PM₁₀.

Pour la fraction PM₁₀, les résultats sont relativement homogènes entre les analyseurs automatiques. Les résultats des comparaisons avec le MP101 indiquent une incertitude à la valeur limite $W_{(k=2)}$ supérieure aux autres. Ceci est induit en particulier par un résultat de la régression (Tableau 5) induisant un biais à la VL plus important. La Figure 9 semble montrer au contraire que le biais moyen des comparaisons avec le MP101 est celui le plus proche de zéro. Ceci est confirmé par le résultat de la régression forcée à zéro qui indique dans ce cas une pente très proche de 1. La plus forte dispersion des écarts et la plus mauvaise corrélation pour les valeurs supérieures à 20 µg/m³ sont à l'origine de cet écart d'interprétation entre les deux méthodes de calcul. Notons également que le nombre des données disponibles est plus faible dans le cas de cet instrument, avec peu de mesure au-dessus de 40 µg/m³.

Le Tableau 6 montre que, pour la fraction PM_{2.5}, les valeurs d'incertitudes $W_{(k=2)}$ sont plus élevées pour les tests de comparaison effectués avec le BAM 1020 que pour ceux réalisés avec les FDMS. La tendance est ici confirmée par les résultats des régressions forcées à l'origine avec une pente de 1,09 pour le BAM et de 1,01 pour les FDMS. Le graphe de gauche de la Figure 9 montre, de manière cohérente, que les écarts moyens sont plus importants lorsque le FIDAS est comparé avec le BAM (pointillés rouges). On peut voir ici que la légère surestimation de l'ensemble de la fraction PM_{2.5} vues dans le Tableau 4 de la section 4.1 peut être attribuée en partie aux résultats issus des comparaisons avec le BAM.

De manière globale, la comparaison des biais moyens sur la Figure 9 confirme les observations de la section 4.1 en indiquant une bonne équivalence des données entre les différentes méthodes, malgré une légère différence de comportement entre les deux fractions de taille PM_{10} et $PM_{2,5}$ ainsi qu'un léger décalage des écarts issus des tests avec le BAM en $PM_{2,5}$. En $PM_{2,5}$, les écarts sont plutôt positifs tandis qu'en PM_{10} , ils sont plutôt négatifs, laissant à penser à une légère surestimation du FIDAS en $PM_{2,5}$ et une légère sous-estimation en PM_{10} par rapport aux autres analyseurs, pour les valeurs de concentration inférieures à $40 \mu g/m^3$. Au-delà de ce niveau de concentration, les mesures FIDAS semblent plutôt être supérieures à celles des autres analyseurs, même s'il est difficile de dégager des tendances puisque le nombre de données disponible est faible avec une dispersion importante.

Le graphe du milieu de la Figure 9 indique également que la dispersion des écarts possède les mêmes tendances quel que soit l'analyseur automatique utilisé et quelle que soit la fraction de taille avec toutefois un écart-type légèrement plus faible en $PM_{2,5}$ entre 20 et $50 \mu g/m^3$.

4.3 Analyse par type de site

Les Figure 10 et 11 présentent, pour chaque type de site (typologie et influence), la régression linéaire orthogonale entre les mesures FIDAS et celles des analyseurs automatiques utilisés pour les tests de mise en œuvre, respectivement en PM_{10} et $PM_{2,5}$.

Les Tableau 7 et 8 reportent, pour chaque type d'analyseur et chaque fraction de taille, les résultats des régressions linéaires orthogonales, les valeurs de la variance inter-préleveurs U_{bs} ainsi que l'incertitude à la valeur limite $W_{(k=2)}$ définies dans les sections 3.1 et 3.2.

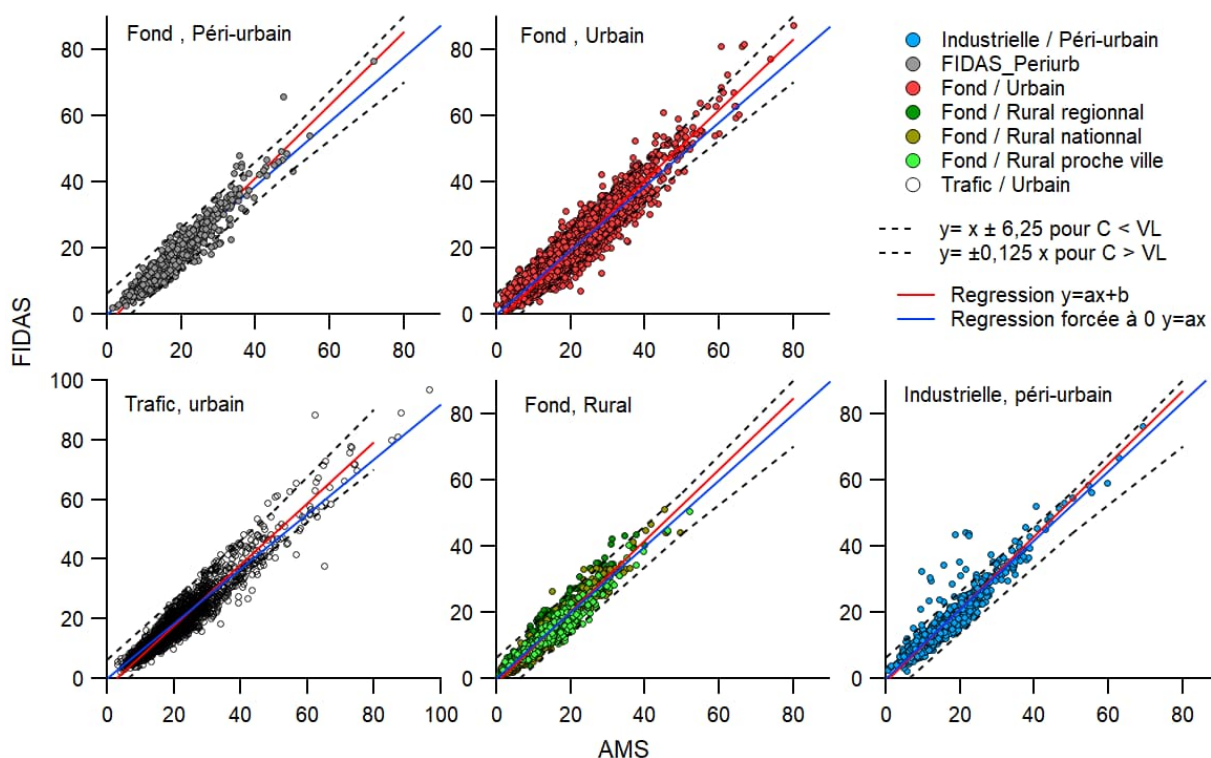


Figure 10 : Régression linéaire orthogonale entre les données Fidas PM_{10} et les différents types d'analyseurs automatiques pour chaque type de site (typologie et influence)

Tableau 7 : Résultats des comparaisons entre les mesures du FIDAS PM₁₀ et l'ensemble des analyseurs automatiques pour chaque type de site (typologie et influence)

Influence	Typologie	Nb de données / Nb de sites	U _{bs}	y= ax+b		RSS/(n-2) (µg/m³)	Biais à VL (µg/m³)	W (k=2) %	y=ax a	Correlation r
				a	b					
Urbain	Fond	7429 / 47	1,98	1,06	-2,07	2,62	1.03	10,55	0,96	0,96
Péri-urbain	Fond	800 / 8	2,05	1,10	-2,77	2,71	2.22	13,43	0,97	0,95
Urbain	Trafic	1808 / 10	2,93	1,03	-2,93	3,72	-1.56	14,62	0,92	0,95
Péri-urbain	Industrielle	976 / 5	2,16	1,10	-1,05	3,07	3.84	19,26	1,04	0,94
Rural Régional	Fond	469 / 3	1,94	1,22	-1,64	2,37	9.46	38,83	1,12	0,96
Rural National	Fond	1030 / 4	1,41	1,07	-1,65	1,85	2.02	10,21	0,97	0,97
Rural proche Ville	Fond	477 / 2	1,47	0,95	-0,14	1,84	-2.47	11,68	0,95	0,96
Rural	Fond	1976 / 9	1,56	1,07	-1,32	2,20	2.41	12,43	0,99	0,96

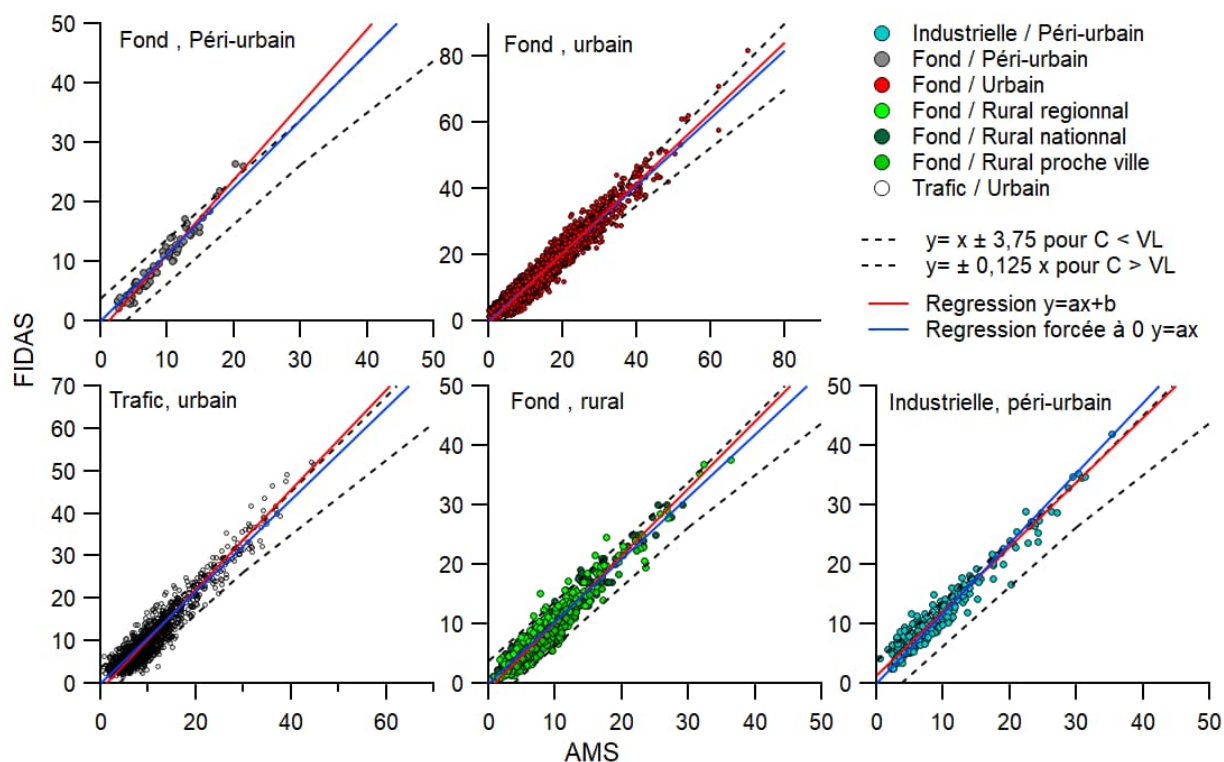


Figure 11 : Régression linéaire orthogonale entre les données Fidas PM_{2.5} et les différents types d'analyseurs automatiques pour chaque type de site (typologie et influence)

Tableau 8 : Résultats des comparaisons entre les mesures du FIDAS PM_{2,5} et l'ensemble des analyseurs automatiques pour chaque type de site (typologie et influence)

Influence	Typologie	Nb de données/ Nb de sites	U _{bs}	y = ax + b		RSS/(n-2) (µg/m ³)	Biais à VL (µg/m ³)	W (k=2) %	y=ax a	Correlation r
				a	b					
Urbain	Fond	6055 / 29	1,46	1,06	-0,52	2,06	0,44	14,72	1,02	0,96
Péri-urbain	Fond	94 / 1	1,14	1,26	-1,47	1,03	5,83	43,21	1,13	0,97
Urbain	Trafic	1362 / 5	1,78	1,17	-1,36	2,39	2,55	29,54	1,08	0,95
Péri-urbain	Industrielle	256 / 1	1,85	1,08	1,29	1,56	3,17	26,29	1,17	0,97
Rural Régional	Fond	397 / 3	1,14	1,14	-0,84	1,50	2,50	23,74	1,07	0,97
Rural National	Fond	419 / 2	0,99	1,11	-0,58	1,32	2,04	19,87	1,06	0,97
Rural Proche Ville	Fond	116 / 1	1,12	1,07	-1,76	1,05	-0,55	3,36	0,89	0,96
Rural	Fond	932 / 6	1,07	1,12	-0,88	1,46	1,92	20,51	1,04	0,96

La Figure 12 présente, pour les deux fractions de taille et pour chaque type de site, la moyenne et l'écart-type des écarts (ou biais) mesurés par niveau de concentration entre le FIDAS et les autres analyseurs automatiques utilisés pour la comparaison.

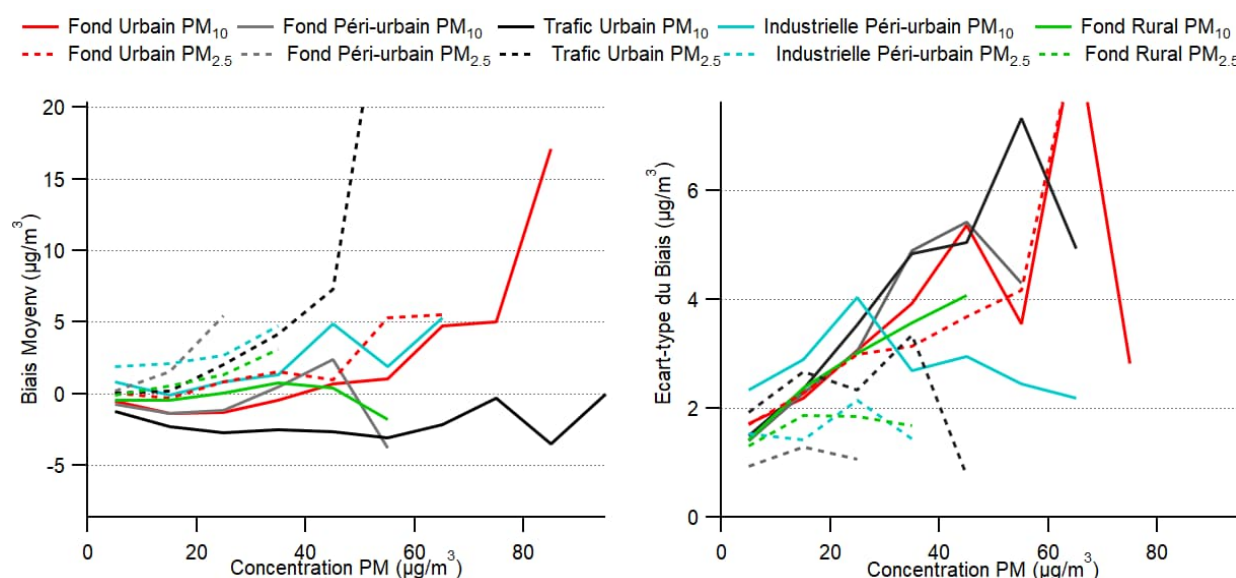


Figure 12 : Biais moyen (à gauche) et écart-type du biais (à droite) en fonction des niveaux de concentration pour les deux fractions de taille PM₁₀ et PM_{2,5}.

Les résultats des comparaisons par type de site (typologie et influence) reportés dans les Tableau 7 et 8 sont moins homogènes que ceux reportés dans les deux sections précédentes où les écarts de mesures étaient analysés par fraction de taille ou par type d'analyseurs, que ce soit en termes de résultats ou de nombre de donnée disponibles. Ici, certains critères statistiques ne sont pas respectés, cependant, ceci doit être mis en perspective avec la différence du nombre de données analysées d'une typologie à une autre.

En PM_{10} , la variance inter-préleveurs U_{bs} pour les sites trafic sous influence urbaine atteint une valeur de 2,93 dans le Tableau 7. Cette valeur élevée s'apparente en partie au fait que les concentrations sont plus importantes sur ce type de site, cependant, l'analyse du graphe de gauche de la Figure 12 confirme bien que les écarts moyens sont plus importants sur toute la gamme de concentration. Sur la Figure 10, on observe également pour les sites de typologie industrielle un nuage de points décorrélés et situés bien au-dessus de la droite de régression, bien que ceux-ci n'impactent pas significativement les résultats finaux du Tableau 7. Enfin, la pente de la droite de régression calculée pour les sites de fond sous influence rurale régionale est relativement élevée avec une incertitude calculée à 38%.

En $PM_{2,5}$, les résultats sur les sites trafic sous influence urbaine présentent une incertitude supérieure à 25%, de même que les typologies industrielles et de fond sous influence péri-urbaine. L'incertitude pour les sites de fond sous influence rurale régionale est légèrement plus élevée que les deux autres typologies rurales mais ne dépasse pas les 25%.

L'ensemble de ces observations doit être pondéré par le nombre de données analysées pour chaque type de site. Par exemple, les données issues des stations de fond de typologie rurale régionale ou encore des typologies péri-urbaines en $PM_{2,5}$ présentent un nombre assez faible de données, provenant d'un nombre réduit de site de mesure. Les résultats sont donc plus représentatifs du site en particulier que de la typologie en général.

Il est donc difficile de tirer des conclusions définitives à partir de cette analyse en extrapolant les résultats à tous les sites d'une même typologie. Cependant, on peut noter que pour les deux fractions, les sites de typologie urbaine sous influence de fond montrent à chaque fois les meilleures régressions avec les incertitudes les plus faibles tandis que les sites de typologie trafic dépassent au moins un critère. Ceci est confirmé par le graphe de gauche de la Figure 12 sur lequel les écarts moyens des sites de fond urbain (lignes rouges) sont bien plus resserrés que ceux des sites trafic (lignes noirs) sur toute la gamme de concentration. Pour ces deux types de site, le nombre de données est par ailleurs relativement important pour les deux fractions de taille. On peut également noter que la seule typologie montrant une décorrélation de certains points mesures est la typologie industrielle. Le nuage de points observé sur la Figure 10 se traduit notamment sur le graphe de droite de la Figure 12 (courbe pleine bleu clair) par des valeurs d'écart-type plus importantes pour les concentrations inférieures à $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

4.4 Analyse par station de mesure

Cette section présente les résultats de chaque site de mesure analysé selon les critères définis précédemment. Les résultats ont été compilés sur la Figure 13 en fonction de l'incertitude à la VL ($W_{(k=2)}$) et de la variance inter-préleveur U_{bs} définies dans les sections 3.1 et 3.2. La valeur limite de chaque critère de mesure (i.e. $W=25\%$ et $U_{bs}=2.5\mu\text{g}/\text{m}^3$) est représentée par une ligne rouge sur le graphique. Cette représentation permet de situer rapidement chaque site de mesure par rapport à ces deux critères.

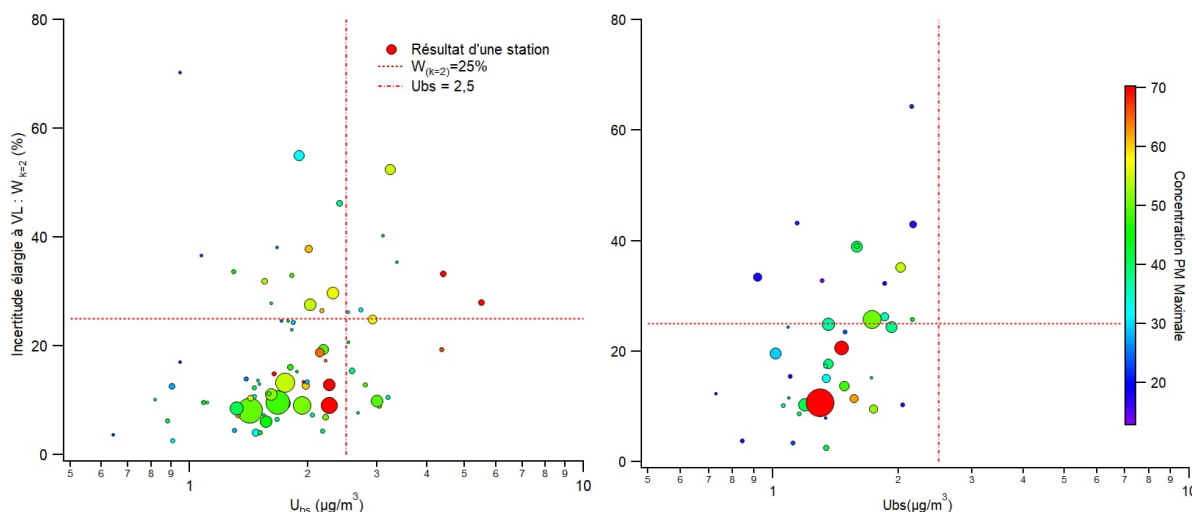


Figure 13 : Représentation graphique des résultats obtenus en PM₁₀ (à gauche) et en PM_{2.5} (à droite) sur chaque site de mesure en fonction de l'incertitude à la valeur limite $W_{(k=2)}$ en ordonnée, de la variance inter-préleveur (U_{bs}) en abscisse. La couleur et la taille des points représentent respectivement les niveaux de concentration maximaux et le nombre de données provenant du site de mesure.

Tout d'abord, la comparaison des deux graphes de la Figure 13 indique que la variance inter-préleveur est plus faible pour les PM_{2.5} que pour les PM₁₀. Ceci est assez cohérent avec les résultats de la section 4.1 indiquant une variance inter-préleveurs moyenne de 2,14 en PM₁₀ contre 1,49 en PM_{2.5}. La taille et la couleur des points sur la Figure 13 indiquent que les valeurs prises par les variances inter-préleveurs ne sont pas systématiquement liées aux niveaux de concentration rencontrés, ni à la taille du jeu de données.

La répartition des valeurs des incertitudes à la VL ($W_{(k=2)}$) indique qu'un nombre minoritaire mais relativement important de sites de mesure possède des valeurs largement au-dessus de 25%. En effet, sur certains de ces sites de mesure, les résultats des régressions linéaires indiquent des pentes significativement différentes de 1, que ce soit en PM₁₀ ou en PM_{2.5}. La Figure 14 donne des exemples de ce type de résultats sur différents sites, en PM₁₀ et en PM_{2.5}, pour lesquels les écarts sont supérieurs à la limite autorisée à la VL. En PM₁₀, les exemples ont été choisis afin de présenter des sites pour lesquels les variances inter-préleveurs prennent différentes valeurs autour de 2,5 µg/m³.

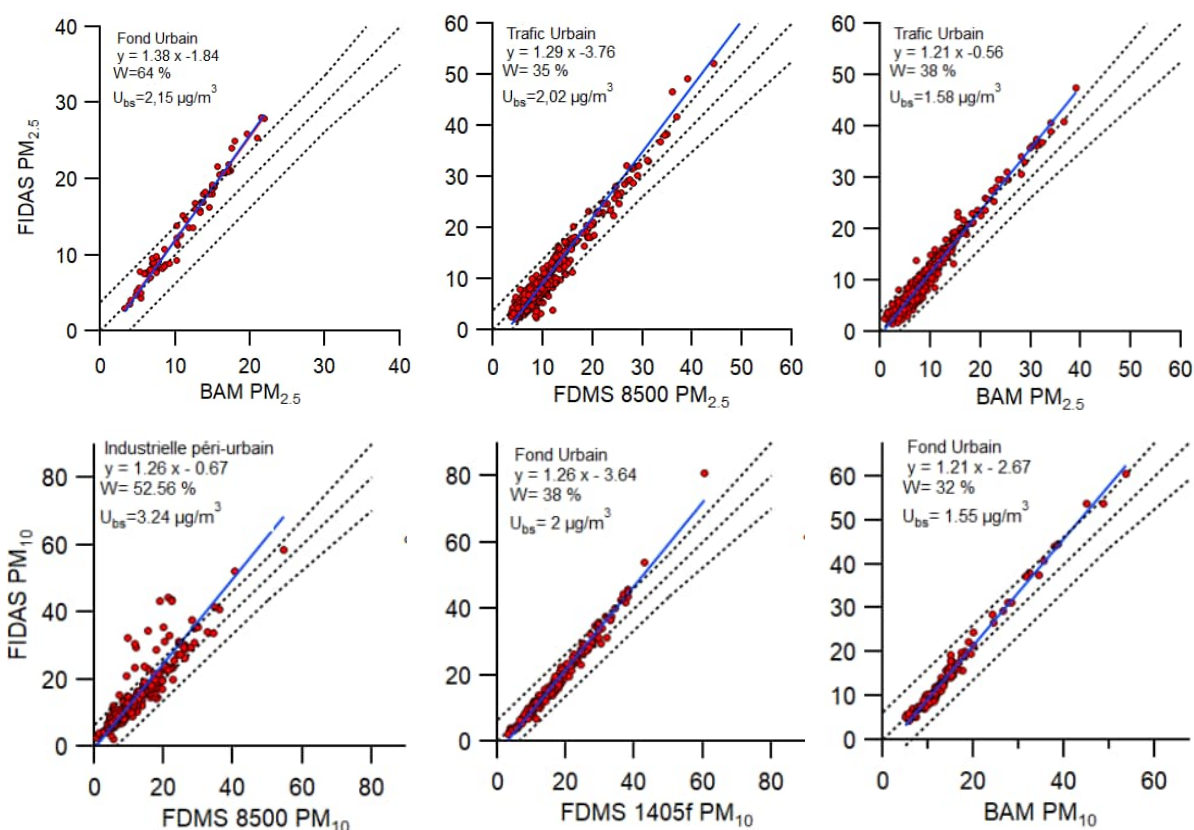


Figure 14 : résultats de mesure sur certains sites pour lesquels les incertitudes $W_{(k=2)}$ mesurées sont largement supérieures à 25%

Sur la Figure 13, certains résultats de régression montrant des incertitudes supérieures à 25% peuvent être nuancés par le fait que le site de mesure présente un faible nombre de points ou des concentrations très faibles qui ne permettent pas d'extrapoler les résultats pour des concentrations plus élevées. C'est notamment le cas des deux sites de mesure représentés sur la Figure 15. Ces deux résultats sont relativement isolés et ne sont pas représentatifs de l'ensemble des sites de mesure. Ces sites sont caractérisés par des valeurs de variance inter-préleveurs faibles devant 2,5.

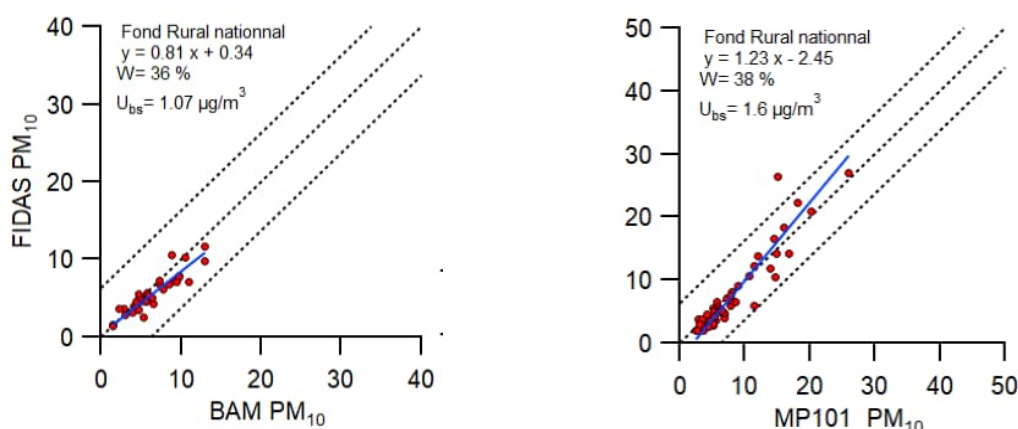


Figure 15 : résultats de mesure sur deux sites pour lesquels les incertitudes $W_{(k=2)}$ mesurées sont largement supérieures à 25% mais pour lesquels le nombre de point de mesure ne permet pas de valider le résultat de la régression sur toute la gamme de mesure.

Sur la Figure 13 en PM₁₀, quelques points possèdent des incertitudes $W_{(k=2)}$ largement inférieures à 25 % mais avec des variances inter-préleveurs supérieures à 2,5 µg/m³. Ces résultats traduisent des sites de mesure pour lesquels le biais moyen est relativement important indiquant parfois un décalage systématique des mesures entre les deux instruments. A titre d'illustration, l'équation (3) de la section 3.1 nous indique que la variance inter-préleveur U_{bs} peut être décomposée comme la somme quadratique d'un biais moyen et d'un terme dispersif.

$$2. U_{bs}^2 = SD_b^2 + (\bar{b})^2 \quad (7)$$

La Figure 16 présente les valeurs de la variance inter-préleveur U_{bs} de chaque site de mesure de la fraction PM₁₀ en fonction des deux termes de l'équation (7). La limite $U_{bs}=2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ peut être alors représentée sur la figure par un cercle de rayon $R = \sqrt{2} * U_{bs}$.

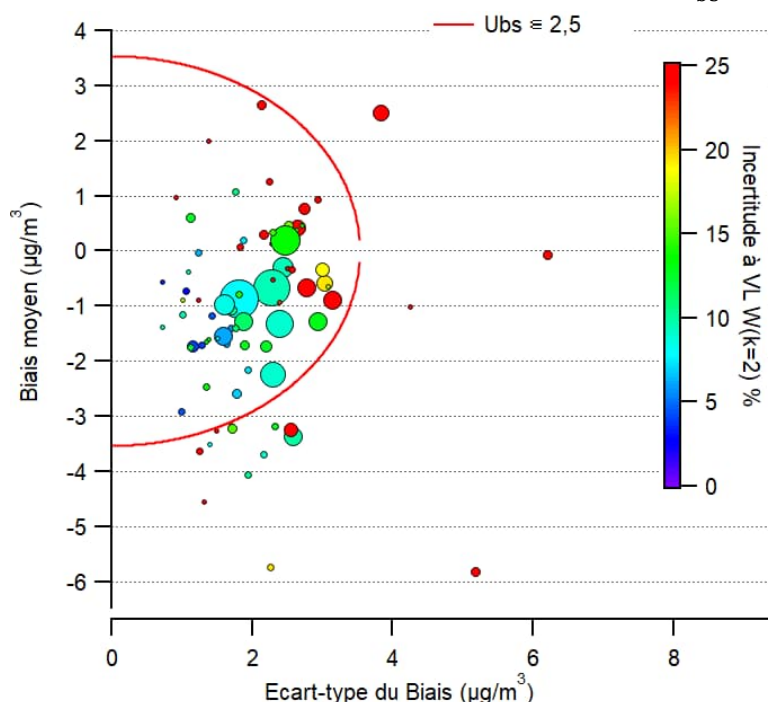


Figure 16 : Représentation graphique des résultats du U_{bs} obtenus en PM₁₀ sur chaque site de mesure en fonction du biais moyen et de l'écart-type du biais. Le cercle rouge représente la valeur $U_{bs}=2.5\mu\text{g}/\text{m}^3$. La couleur des points représente la valeur de l'incertitude $W(k=2)$ et la taille des points le nombre de données disponible sur chaque site.

Sur la Figure 16, les points de mesure pour lesquels les valeurs de U_{bs} sont supérieures à 2,5 µg/m³ sont situés à l'extérieur du cercle et ceux pour lesquels les incertitudes $W_{(k=2)}$ sont supérieures à 25% sont de couleurs rouges. Les points situés à l'extérieur du cercle et pour lesquels l'incertitude est inférieure à 25% sont tous caractérisés, dans le cas de notre étude, par des biais moyens entre -3 et -5 µg/m³. Même si dans ces cas précis, l'écart respecte les critères fixés à la valeur limite (i.e. 6,25 µg/m³), la question se pose si ces écarts doivent être tolérés pour les concentrations les plus basses. Ceux-ci peuvent notamment avoir un impact sur le calcul des moyennes annuelles par exemple.

Les Figure 17 et 18 présentent, respectivement pour les fractions PM₁₀ et PM_{2,5} les résultats de la Figure 13, mais en indiquant les types d'analyseur utilisés et les types de site d'où proviennent les mesures.

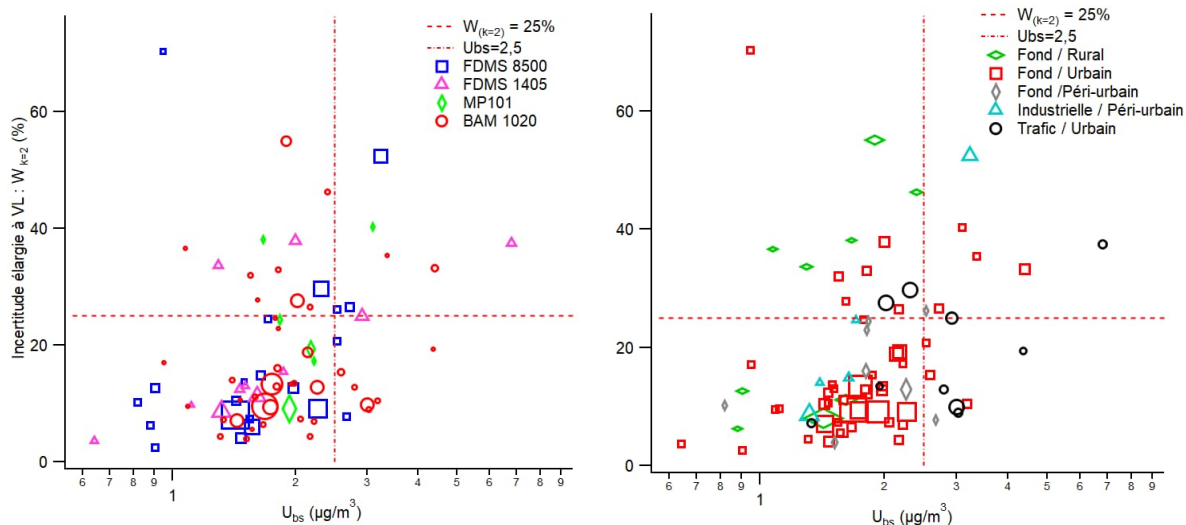


Figure 17 : Représentation graphique des résultats obtenus en PM_{10} sur chaque site de mesure en fonction de l'incertitude à la valeur limite $W_{(k=2)}$ (ordonnée) et de la variance inter-préleveur (U_{bs}) (abscisse) pour chaque type d'analyseur (graphe de gauche) et chaque type de site (graphe de droite). La taille des points le nombre de données provenant du site de mesure.

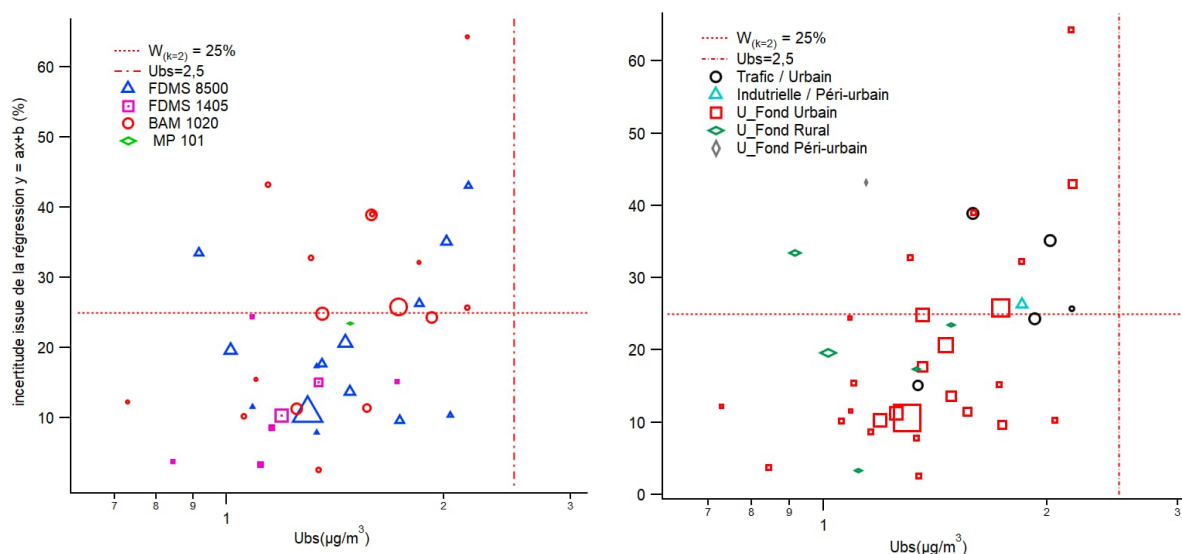


Figure 18 : Représentation graphique des résultats obtenus en $PM_{2.5}$ sur chaque site de mesure en fonction de l'incertitude à la valeur limite $W_{(k=2)}$ (ordonnée) et de la variance inter-préleveur (U_{bs}) (abscisse) pour chaque type d'analyseur (graphe de gauche) et chaque type de site (graphe de droite). La taille des points le nombre de données provenant du site de mesure.

Les Figure 17 et 18 indiquent que, hormis pour le FDMS 1405-F en $PM_{2.5}$, tous les types d'analyseurs et tous les types de site de mesure peuvent être concernés par des dépassements des critères de mesures. Il est cependant difficile ici de trancher entre une tendance du FDMS 1405-F ou bien d'un effet statistique.

La distribution des résultats site par site conforte l'idée que le résultat de la comparaison est fortement dépendant du contexte local de la station de mesure.

Néanmoins, ces graphes confirment certaines tendances énoncées dans les sections précédentes à savoir :

- Les mesures sur site trafic, représentées par des cercles noirs sur les graphes de droite, sont pour les deux fractions relativement excentrées par rapport aux autres types de site. En effet, en PM_{10} , 4 sites sur 10 sont au-delà de la limite des 25% d'incertitude et 6 sites sur 10 sont au-delà de la limite $U_{b5} = 2,5 \mu g/m^3$. Seulement deux sites respectent les deux critères à la fois. En $PM_{2,5}$, trois sites sur quatre sont au-delà de la limite des 25% d'incertitude.
- Les mesures sur site de fond sous influence urbaine sont majoritairement situées dans la zone inférieure à 25% et $2,5 \mu g/m^3$, même si certains sites dépassent les critères.
- L'incertitude d'un nombre assez important de sites de fond ruraux (5 sites sur 9) est largement au-dessus des 25% d'incertitude en PM_{10} . Ceci doit être mis en perspectives avec les concentrations obtenues sur chacun de ces sites de mesure comme cela a été montré sur la Figure 15.

5. PROTOCOLE DE VALIDATION

Cette section propose une méthode de validation des tests de comparaison entre le FIDAS et un autre type d'analyseur automatique à partir des critères de mesure définis précédemment dans le chapitre 3, à savoir :

- **Critère n°1** : Calcul de l'incertitude $W_{(k=2)}$ à la VL à l'aide de la régression orthogonale $y=ax+b$ selon le protocole de la norme NF EN 16450. (cf. section 3.2)
- **Critère n° 2** : Calcul de l'incertitude inter-préleveur U_{bs} . (cf. section 3.1)
- **Critère n°3** : Analyse de l'évolution de l'écart entre les instruments et définition d'un intervalle de confiance. (cf. section 3.3)

Une feuille de calcul Excel « feuille analyse FIDAS vs AMS.xlsx » associée à ce document permet le calcul de ces critères.

5.1 Constitution de la base de données

Les tests de mise en œuvre peuvent être réalisés avec n'importe quel autre type d'analyseur automatique déclarés conforme pour la surveillance de la qualité de l'air ne reposant pas sur une technologie de diffusion de la lumière.

La constitution de la base de données doit respecter les exigences du RTN via la « Liste des instrument conforme pour la surveillance de la qualité de l'air ». A la date de rédaction de ce rapport, le RTN indique qu'une base de données rassemblant un minimum de 60 jours de mesures est requises pour chaque fraction PM_{10} et $PM_{2,5}$.

Le RTN spécifie également qu'une cette durée peut être réduite à 1 mois sur chaque fraction lorsque l'AASQA n'a pas les moyens de mobiliser des analyseurs supplémentaires. Cela concerne les cas suivants :

- Ouverture d'une nouvelle station de mesure : il y alors besoin de mobiliser deux appareils pour réaliser la comparaison sur chaque fraction de taille ;
- Ouverture d'un point de prélèvement $PM_{2,5}$ à la suite de l'installation du FIDAS : dans ce cas, la station de mesure n'est équipée que d'un seul analyseur PM_{10} et la comparaison nécessite alors de mobiliser un appareil supplémentaire.

5.2 Analyse du site en fonction de $W_{(k=2)}$ et U_{bs} .

Les résultats provenant d'un site de mesure doivent être caractérisés à l'aide de l'incertitude à la VL $W_{(k=2)}$ et de la variance inter-préleveurs U_{bs} définis en 3.2 et 3.1.

Concernant l'évaluation de l'incertitude à la VL $W_{(k=2)}$:

- Une valeur par défaut de $U_{rm} = 1$ est proposée à partir des valeurs renseignées dans le Tableau 3. Elle permet de majorer l'incertitude de reproductibilité de l'ensemble des analyseurs automatiques.

- Il est permis de comparer les résultats fournis par la régression linéaire orthogonale avec ceux de la régression linéaire standard. La méthode pourra évoluer en fonction des résultats de la mise à jour des guides et norme européens.

Les résultats des calculs pour chaque site de mesure doivent être situés à l'aide de la représentation graphique introduite sur la Figure 13 par rapport aux valeurs limites des critères proposés dans la norme NF EN 16450 et par rapport à l'ensemble des résultats de la base de données. L'analyse de la base de données présentée au chapitre 4 a permis de rendre compte des comportements des jeux de données en fonction de leur position sur le graphique. Ainsi, la Figure 19 présente quatre zones du graphique qui illustrent les différents comportements observés lors de l'analyse de la base de données.

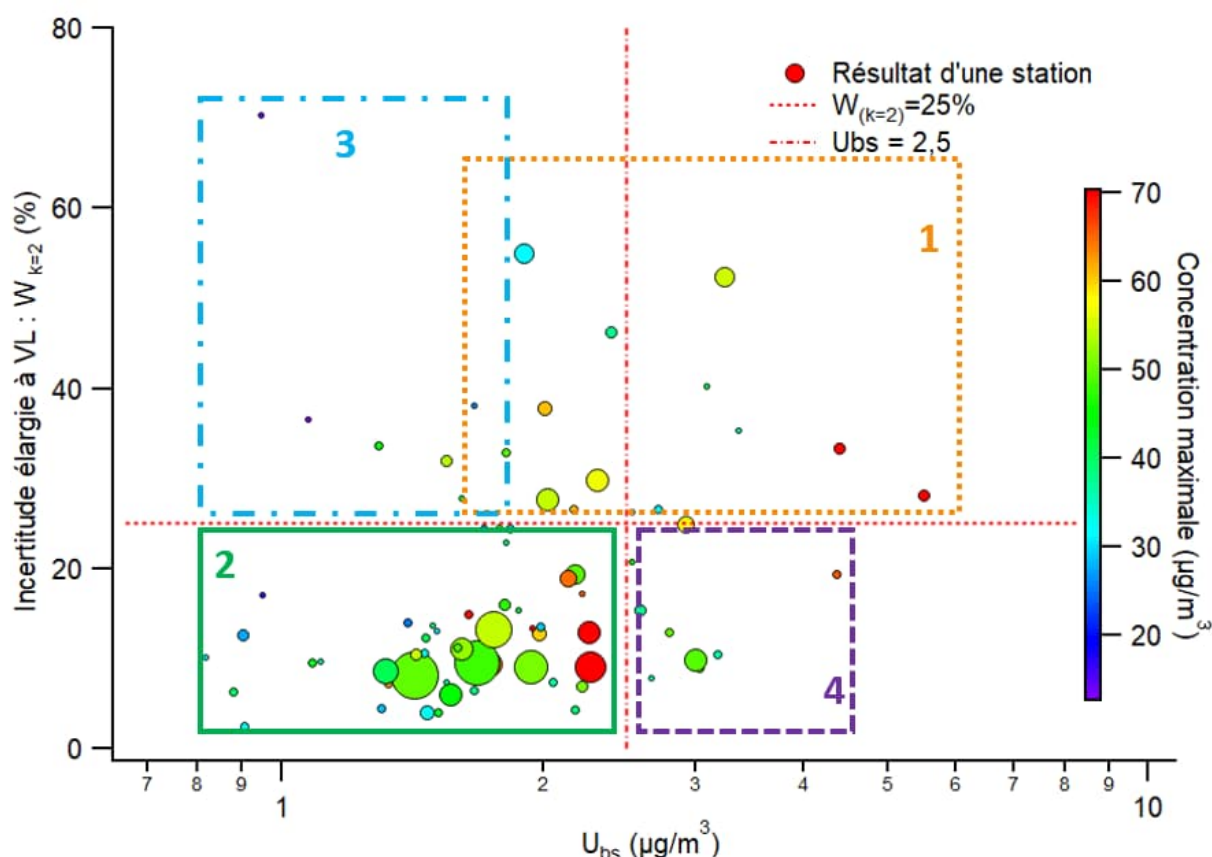


Figure 19 : Identification des résultats de comparaison par zone graphique

Zone n°1 (ligne pointillés oranges) : $W_{(k=2)} > 25\%$: Cette zone contient les mesures pour lesquelles les régressions linéaires indiquent une incertitude à la VL supérieur à 25%. Les écarts entre les deux analyseurs sont trop importants pour valider la comparaison. Certains cas de figure avec des valeurs d' U_{bs} faibles et des concentrations faibles peuvent cependant paraître ambigus (illustrés par la zone de recouvrement avec la zone 3).

Zone n° 2 (ligne pleine verte) : $W_{(k=2)} < 25\%$ & $U_{bs} < 2,5$: Cette zone contient les mesures pour lesquelles les régressions linéaires indiquent une incertitude à la VL ainsi qu'une incertitude inter-préleveurs satisfaisants. Les comparaisons sont validées.

Zone n°3 (ligne tiret-pointillés bleus) $W_{(k=2)} > 25\%$: cas particulier pour $U_{bs} < 2,5$: Cette zone contient les sites pour lesquels la taille du jeu de données et les concentrations sont faibles, amenant à une incertitude U_{bs} faible, proche de 1. Dans ce cas, la régression linéaire n'est pas toujours représentative du comportement à la VL. Il convient alors d'augmenter le jeu de données. S'il s'agit bien d'une mauvaise interprétation de la régression linéaire liée à des concentrations trop faibles sur un site où l'obtention de valeurs hautes est difficile (cas des sites ruraux par exemple), les données doivent être analysées avec le troisième critère défini dans la section 3.3. La limite entre la zone 1 et 3 n'est pas évidente à définir. C'est pourquoi une zone de recouvrement a été tracée sur la figure.

Zone n°4 (ligne de tirets violets) $W_{(k=2)} < 25\%$ & $U_{bs} > 2,5$: Cette zone correspond à des résultats indiquant un biais moyen, parfois systématique, entre les deux méthodes de mesure (type offset). Dans ce cas, les données doivent être analysées avec le troisième critère défini dans la section 3.3 afin de quantifier l'importance des écarts et le nombre de données sortant de l'intervalle de confiance fixé. Il peut être judicieux de se poser la question de l'origine du biais systématique en fonction du type d'analyseur automatique utilisé : réglage du blanc des BAM (« BKGD »), ou problème d'humidité résiduelles dans les FDMS ...

Zones frontalières ou cas pour lesquels le résultat de la régression linéaire est sujette à questionnement à cause par exemple d'une forte dispersion des points de mesure ou de faible niveau de concentration : Dans ce cas, les données doivent être analysées avec le troisième critère défini dans la section 3.3 afin de quantifier l'importance des écarts et le nombre de données sortant de l'intervalle de confiance fixé.

5.3 Quantification des écarts et de la dispersion des points par niveaux de concentration

L'application stricte des deux critères de mesure (n°1 et n°2) peut parfois être sujette à discussion lorsqu'ils sont proches des limites définies ou quand le jeu de données ne permet pas une bonne estimation de l'incertitude à la VL. Comme cela a été évoqué plus haut, cela peut être le cas lorsque la dispersion des données est importante, lorsque la répartition des points est limitée aux basses concentrations ou encore lorsque la répartition des points ne permet pas un ajustement linéaire. Citons également le cas où l'incertitude à la VL est satisfaisante malgré l'existence d'un biais systématique qui impacte notamment de manière relative les basses concentrations. Dans ces cas de figure, il est demandé de quantifier les écarts par niveau de concentration à l'aide du troisième critère défini dans la section 3.3.

La Figure 20 présente un exemple de résultat de comparaison. Ce site présente une valeur d'incertitude à la VL $W_{(k=2)}$ satisfaisante et une variance inter-préleveurs U_{bs} légèrement au-dessus de $2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Le graphe de gauche présente la régression linéaire orthogonale. Le graphe du centre présente les valeurs des écarts en fonction des niveaux de concentration. Le graphe de droite présente les valeurs des écarts pour trois gammes de concentration : toutes les données ainsi que deux jeux de données réparties autour de $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

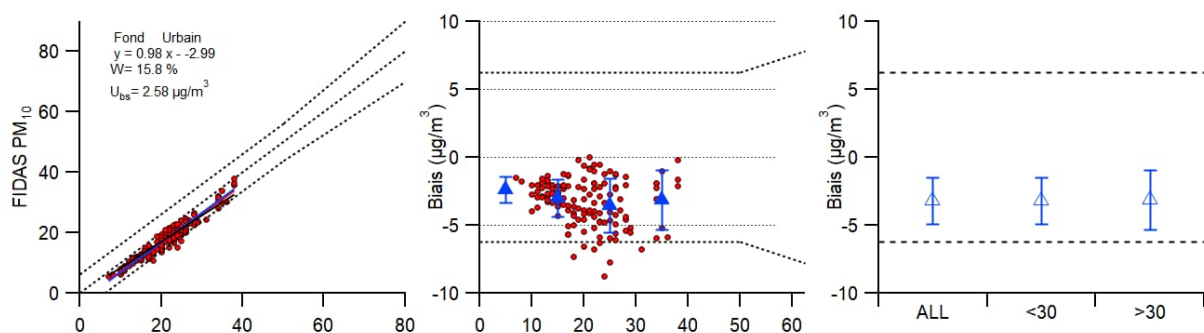


Figure 20 : Représentation graphique des résultats des tests de comparaison obtenus sur un site de mesure en particulier. A gauche : régression linéaire orthogonale entre le FIDAS et une autre méthode de mesure. Au centre : écart de mesure entre fonction des niveaux de concentration. A droite : valeurs moyennes des écarts par gamme de concentration.

Le Tableau 9 présente les valeurs numériques des écarts par niveaux de concentration. Il reporte notamment les écarts moyens, les écarts-types ainsi que les distributions des écarts par quartile.

Tableau 9 : Valeurs des écarts par niveau de concentration (valeur moyenne, écart-type, distribution interquartile) et quantification du nombre de points dépassant un intervalle spécifique.

Gamme de concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Tout	$\leq 0,6 * VL$	$> 0,6 * VL$	0 -10	10-20	20-30	30-40	>40
Nombre de données	133	122	11	9	68	45	11	0
Nb de données $< -U_{C=VL}$	7	7	0	0	5	2	0	-
Nb de données $> U_{C=VL}$	0	0	0	0	0	0	0	-
% points $< -U_{C=VL}$ et $> U_{C=VL}$	5,3%	5,7%	0,0%	0,0%	7,4%	4,4%	0,0%	-
Distribution des valeurs par quartiles								
Min	-8,8	-8,8	-5,9	-3,9	-8,8	-7,7	-5,9	-
Q10	-5,7	-5,6	-5,9	-3,8	-5,5	-5,8	-5,9	-
Q25	-4,3	-4,3	-4,1	-2,9	-4,2	-4,8	-4,1	-
Q50	-2,9	-2,9	-2,2	-2,5	-3,0	-3,3	-2,2	-
Q75	-2,1	-2,1	-1,8	-2,0	-2,2	-1,9	-1,8	-
Q90	-1,3	-1,3	-1,0	-1,7	-1,6	-0,9	-1,0	-
Max	0,0	0,0	-0,2	-1,5	-0,2	0,0	-0,2	-
Moyenne, écart-type, définition de l'intervalle contenant 68% des points								
Biais Moyen \bar{b} (μg)	-3,23	-3,26	-2,83	-2,59	-3,31	-3,33	-2,83	-
Biais Moyen \bar{b} (%)	-17,0%	-18,5%	-8,3%	-30,2%	-21,9%	-14,4%	-8,3%	-
Ecartype σ (μg)	1,73	1,71	1,97	0,83	1,64	1,94	1,97	-
B+σ	-1,67	-1,74	-0,95	-2,06	-1,90	-1,53	-0,95	-
B-σ	-4,96	-4,98	-4,80	-3,43	-4,95	-5,26	-4,80	-
$\bar{b} - t_{k,1-0,68} \sigma$	-1,66	-1,73	-0,86	-2,04	-1,89	-1,51	-0,86	-
$\bar{b} + t_{k,1-0,68} \sigma$	-4,79	-4,80	-4,80	-3,15	-4,74	-5,14	-4,80	-
P(-6.5 < B < 6.5) %	95,9%	95,8%	94,5%	99,9%	96,2%	93,1%	94,5%	-

L'objectif consiste à vérifier que les valeurs des écarts restent comprises dans l'intervalle fixé par les limites réglementaires à la VL soit $U_{C=VL} = 6,25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en PM_{10} et $3,75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en $\text{PM}_{2,5}$. Pour cela, deux approches sont possibles :

- La première consiste à compter pour chaque gamme de concentration le nombre de valeur qui s'écartent de l'intervalle. Par exemple, dans le Tableau 9, 7,4% des valeurs s'écartent de l'intervalle pour la gamme de concentration 10-20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Il est également possible d'utiliser les valeurs interquartiles.
- La deuxième approche consiste à calculer dans quel intervalle sont distribuées les données à l'aide du biais moyen et de l'écart-type du biais. Dans cet exemple, en considérant une répartition normale des données, 68% des valeurs sont comprises entre -1,89 et 4,74 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour la gamme de concentration 10-20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. La loi inverse de Student renseigne que 96,2% des données sont comprises dans l'intervalle [-6,25 ; 6,25]

L'objectif qualité fixé dans ce travail est que 80% des points doivent être compris dans l'intervalle définie par $\pm U_{C=VL}$ pour chaque niveau de concentration.

Le calcul de ce critère doit permettre la discussion des données au cas par cas, laissant une marge d'interprétation à l'AASQA lorsque les résultats de la régression sont ambigus, ou que les valeurs des deux premiers critères sont proches des limites définies. Il peut permettre également d'analyser les valeurs des écarts de mesure en fonction des niveaux de concentration attendus sur le site de mesure concerné, et notamment ceux sur lesquels les niveaux de concentrations sont toujours très inférieurs aux VL.

Enfin, ce critère de mesure doit permettre de mieux caractériser la marge d'erreur qui sera associée au remplacement de l'instrument. Par exemple, le cas de figure traité dans ce chapitre montre un biais systématique de 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sur toute la gamme de concentration. Il est envisageable, par exemple, que le changement d'instrument induise un décalage d'environ 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sur la valeur moyenne annuelle. Si ces 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ respectent la marge de tolérance fixée par $U_{C=VL}$ pour les valeurs de concentration élevées, celle-ci devient relativement importante pour les valeurs de concentration plus basses. Par exemple, pour la gamme de concentration 0-10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, le Tableau 9 indique que l'écart représente un biais de 30%. Les directives européennes en vigueur ne définissant pas d'incertitude limite pour les gammes de concentration faible, aucune limite spécifique n'a été définies dans ce travail afin de ne pas être plus restrictif, cependant il est recommandé d'évaluer ces erreurs.

6. CONCLUSION

Le Référentiel Technique National (RTN) pour la surveillance de la qualité de l'air en France indique que la mise œuvre des granulomètres optiques FIDAS (et par extension d'autres types d'analyseurs basés sur la diffusion de la lumière) doit être assujettie à la validation de tests de comparaisons avec un autre instrument de mesure pris comme référence (méthode de référence ou analyseur automatique déclaré conforme qui ne soit pas un analyseur basé sur la diffusion de la lumière).

Le travail mené, basé en plusieurs étapes, a permis d'aboutir à l'établissement d'une méthodologie de validation de tests de comparaison.

Dans un premier temps, une base de données a été constituée afin de rassembler l'ensemble des mesures conjointes du FIDAS avec un autre type d'analyseur, détenues par les AASQA et le LCSQA. Cette base de données rassemblait, fin 2023, respectivement 12989 et 8699 paires de données journalières pour les fractions PM_{10} et en $PM_{2.5}$. Ces données proviennent de 79 sites de mesures réparties sur les différentes régions Française et typologies/influences de mesure présentes sur le territoire national et incluant l'ensemble des analyseurs automatiques disponibles.

Dans un second temps, ce travail a consisté à proposer des critères de validations pour l'analyse des jeux de données. Deux outils statistiques de la norme NF EN 16450 qui encadre l'utilisation des analyseurs automatique de PM, ont été utilisés : l'incertitude inter-préleveurs et l'incertitude à la valeur limite. L'analyse de la base de données à l'aide de ces deux outils a permis de mettre en lumière leurs limites d'application sur certains jeux de données, notamment ceux présentant une répartition des concentrations peu homogène, un faible nombre de points ou encore des faibles niveaux de concentration. Un troisième outil statistique, basé sur l'analyse des écarts par niveau de concentrations a donc été proposé dans ce travail, dans le but d'affiner les résultats et d'aider à la validation des comparaisons.

Enfin, l'ensemble de la base a été analysé à l'aide des trois outils et critères proposés. Les analyses ont été réalisés par fraction de taille, par type d'analyseurs, par typologie et influence de mesure ainsi que pour chaque site de mesure individuelle. L'analyse des résultats par type d'analyseur et par fraction a montré qu'en moyenne les résultats du FIDAS étaient équivalents aux autres analyseurs automatiques pour les deux fractions de taille. L'analyse des résultats obtenus pour les différentes typologies et influences a confirmé cependant des tendances différentes en fonction des typologies de sites. Les résultats sur les sites de fond sous influence urbaine présentent les meilleurs résultats, a contrario, les tendances sont moins bonnes sur les sites trafic, ou sur les sites industriels. Cependant, malgré l'existence de tendances globales en fonction des typologies, la distribution des résultats analysés site par site conforte l'idée que le résultat de la comparaison est fortement dépendant du contexte local de la station de mesure.

La dernière partie de ce rapport détaille le protocole de validation qui doit être utilisé sur un jeu de données en accord avec le RTN et « la liste des instruments conforme pour la surveillance de la qualité de l'air » pour la mise en œuvre des analyseurs automatiques de PM par diffusion de la lumière.

