HAL
open science

Réalisation d'un exercice d'inter-comparaison PM10, à l'aide d'un système de dopage

Olivier Le Bihan, Fabrice Marliere, Isaline Fraboulet, B. Rocq, Robin Aujay, Nicolas Karoski

▶ **To cite this version:**

Olivier Le Bihan, Fabrice Marliere, Isaline Fraboulet, B. Rocq, Robin Aujay, et al.. Réalisation d'un exercice d'inter-comparaison PM10, à l'aide d'un système de dopage. 26. Congrès Français sur les Aérosols (CFA 2011), Jan 2011, Paris, France. pp.NC. ineris-00973606

HAL Id: ineris-00973606

https://ineris.hal.science/ineris-00973606

Submitted on 4 Apr 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

REALISATION D'UN EXERCICE D'INTERCOMPARAISON PM10, A L'AIDE D'UN SYSTEME DE DOPAGE

O. Le Bihan* (1), F. Marlière (1), I. Fraboulet (1), B. Rocq (2), R. Aujay (1), N. Karoski (1).

(1) Institut national de l'environnement industriel et des risques (INERIS), Parc Technologique Alata, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte. olivier.le-bihan@ineris.fr

(2) Atmo Picardie, Amiens.

TITLE
PM10 intercomparison exercise using an enrichment device.

ABSTRACT
The participation to inter-laboratory exercises is a key step for any ambient air quality monitoring network.
To guarantee the interest of such campaigns, participants need a large range of concentration, including regulatory limits.
As far as PM10 is concerned, the 1996 European directive implement a 24h hours limit of 50 µg/m3 with a maximum relative uncertainty of 25%.
In the frame of the French National Air Quality Laboratory (LCSQA), INERIS has developped a special PM10 or PM2,5 particles enrichment system.
Results from a first exercise show that our prototype is able to distribute to 6 TEOM microbalances air in a range of PM10 concentration from the background up to 120 µg/m^3. Uncertainty has been calculated for the all range and stays below 25 %, especially at the regulatory daily limit value.

RESUME

La détermination de l'incertitude associée à une mesure, est essentielle.
Dans le domaine de la qualité de l'air, une telle information permet aux utilisateurs –statisticiens, modélisateurs, etc.- de connaître le niveau de qualité de chaque observation ; elle permet aux producteurs de données de situer leur niveau de performance.

Cette incertitude sur la mesure peut être déterminée par le biais d'une participation à des exercices d'intercomparaison, ou « exercices inter-laboratoires ». Afin de garantir l'efficacité d'une telle session, il est essentiel de bénéficier d'un spectre large de concentration. Dans le cadre du LCSQA, l'INERIS a entrepris de développer des systèmes d'enrichissement, appelés aussi « systèmes de dopage » pour les particules de type PM10 et PM 2,5.
Après une phase d'étude en laboratoire [Fraboulet, 2009], ce dispositif a été mis en œuvre pour la première fois. Six micro-balances de type TEOM, munies de têtes PM10, ont été comparées. Le recours à ce système de dopage a permis d'étendre l'exercice d'intercomparaison jusqu'à un niveau de 120 µg/m^3.

L'exploitation des données a permis de déterminer la variance de répétabilité, la variance interlaboratoires et l'intervalle de confiance de reproductibilité associé aux mesures fournies par l'ensemble des participants (approche dérivée de la norme ISO 5725-2). Il en ressort que la qualité des mesures respecte les exigences de la Directive européenne en terme d'intervalle de confiance (25 %) à la valeur limite journalière.

INTRODUCTION

La détermination de l'incertitude associée à une mesure est essentielle.
Dans le domaine de la qualité de l'air, une telle information permet aux utilisateurs –statisticiens, modélisateurs, etc.- de connaître le niveau de qualité de chaque observation ; elle permet aux producteurs de données de situer leur niveau de performance.

Cette incertitude sur la mesure peut être déterminée par le biais d'une participation à des exercices d'intercomparaison, ou « exercices inter-laboratoires ».
Ce type d'exercice est organisé dans le cadre de la surveillance réglementaire « air ambiant » française.
Afin de garantir l'efficacité de tels exercices interlaboratoires, il est essentiel de bénéficier d'un spectre large de concentration, afin de tester le matériel sur une gamme représentative des conditions réelles. Il est également important d'inclure les valeurs limites réglementaires pour lesquelles il existe des exigences en matière d'incertitude ; c'est le cas de la surveillance des PM10, pour lesquels une incertitude maximale de 25% est exigée à 50 µg/m^3 (mesure sur 24h).

Lorsqu'un exercice est mené en air ambiant, il est en pratique impossible de garantir *a priori* un tel niveau de concentration : les conditions météorologiques jouent un rôle essentiel ; ainsi, si l'exercice se déroule lors une période tempérée et aérée, les concentrations rencontrées resteront modérées. C'est pourquoi dans le cadre du LCSQA, l'INERIS a entrepris de développer des systèmes d'enrichissement, appelés aussi « systèmes de dopage ».

La présente communication est consacrée au développement d'un tel dispositif pour les particules de type PM10 et PM 2,5. Il est composé de trois parties essentielles [Fraboulet, 2009] : un système de distribution (1/) prélève de l'air ambiant, le mélange avec le rejet d'un générateur de particules (2/), et distribue ce mélange à un ensemble d'enceintes au sein desquelles un appareil de mesurage effectue un prélèvement de type PM10. Cet ensemble est placé sur le toit d'une station de mesure, au sein de laquelle sont mis en œuvre les analyseurs testés.
Après une phase d'étude en laboratoire [Fraboulet, 2009], ce dispositif a été mis en œuvre pour la première fois, à l'occasion d'un exercice d'intercomparaison. Six micro-balances de type TEOM, munies de têtes PM10, ont été comparées dans trois configurations :

- « air ambiant » : les appareils ont été placés côté à côte dans une station de surveillance de la qualité de l'air ;
- « air pulsé » : un dispositif de distribution d'air a été mis en œuvre [Fraboulet, 2009], assurant la fourniture de la même matrice à l'ensemble des instruments ; ceci tend *a priori* à homogénéiser les échantillons fournis aux participants ;
- « dopage » : un générateur de particules a été mis en fonctionnement, et connecté au système de distribution.

Le recours à ce système de dopage a permis d'étendre l'exercice d'intercomparaison jusqu'à un niveau de 120 µg/m^3.

METHODE DE CALCUL

L'étude de l'incertitude sur la mesure d'un appareil peut être réalisée par modélisation [GUM], ou par le biais d'un exercice interlaboratoire. Cette dernière approche est la plus importante, car elle est indispensable pour valider les résultats d'une approche par modélisation.
Le Tableau 1 présente les différentes étapes de la méthode de calcul appliquée pour cette étude.

Etape	Approche globale : exercice inter-laboratoire	Calcul dérivé de [référence]
1	Production de données expérimentales (terrain)	/
2	Détection des valeurs aberrantes (Test de Grubbs)	/
3	Calcul de l'écart-type de reproductibilité	[ISO 5725-2]
4	Intervalle de confiance	[XP 43-331]

Tableau 1 : présentation de la méthode de calcul utilisée dans cette étude.

Une fois la base de données constituée lors d'un exercice d'intercomparaison (étape 1), le test de Grubbs est appliqué afin de détecter et de supprimer les valeurs aberrantes (étape 2). Ce test est basé sur la comparaison des observations de chaque participant, avec la moyenne des observations à l'échelle du groupe de participants.
Il s'agit ensuite de calculer l'écart-type de reproductibilité (étape 3). Le traitement des données peut être mené de deux manières.
Dans un premier cas, à chaque participant correspond un appareil unique ; l'intervalle de confiance de reproductibilité est alors calculé selon l'équation 1 :

pour le niveau *j*, la variance de reproductibilité est $S_{Rj}^2 = \frac{S_{dj}^2}{\overline{\overline{n}}_j}$ (1)

avec $S_{dj}^2 = \frac{1}{p-1}\left[\sum_{i=1}^{p} n_{ij}(\overline{y}_{ij})^2 - (\overline{\overline{y}}_j)^2 \sum_{i=1}^{p} n_{ij}\right]$ (2)

- où i est le nombre de participants variant de 1 à p
- où j est un niveau de concentration
- où p est le nombre de participants
- où n_{ij} est le nombre de mesures du participant i pour le niveau de concentration j
- $\overline{y}_{ij}$ est la moyenne des mesures du participants i au niveau de concentration j

$\overline{\overline{y}}_j$ la moyenne générale pour un niveau de concentration j

avec $\overline{\overline{y}}_j = \frac{\sum_{i=1}^{p} n_{ij}\overline{y}_{ij}}{\sum_{i=1}^{p} n_{ij}}$

et le nombre de mesures moyen du niveau de concentration j $\overline{\overline{n}}_j = \frac{1}{p-1}\left[\sum_{i=1}^{p} n_{ij} - \frac{\sum_{i=1}^{p} n_{ij}^2}{\sum_{i=1}^{p} n_{ij}}\right]$.

Dans un second cas, un ou plusieurs participants disposent d'un second appareil ; il devient alors possible de distinguer deux contributions (cf. équation 3), c'est-à-dire d'une part la dispersion propre au mesurage de chaque participant (écart-type de répétabilité), d'autre part la dispersion à l'échelle des participants (écart-type inter-laboratoire, cf. équation 4). La configuration « air ambiant » de cette étude, correspond à ce cas, un participant ayant pu s'équiper de deux appareils.

pour le niveau *j*, la variance de reproductibilité est S_{Rj}^2 où $S_{Rj}^2 = S_{rj}^2 + S_{Lj}^2$ (3)

avec S_{Lj}^2 la variance interlaboratoire où $S_{Lj}^2 = \frac{S_{dj}^2 - S_{rj}^2}{\overline{\overline{n}}_j}$ (4)

L'intervalle de confiance de reproductibilité est calculé (étape 4) comme suit :

$I_{CR} = t_{(1-\alpha/2)} . S_{Rj}^2$ (5)

avec $t_{(1-\alpha/2)}$ le fractile de la loi de student à *n-1* degré de liberté et ici α = 0,05.

RESULTATS ET DISCUSSION

La base de données a été constituée de valeurs ¼ horaires (moyenne sur 15 minutes). Chaque participant a mis en œuvre ses propres matériels et ses propres procédures de contrôle. Un nombre très limité de données ont été exclues (< 1 % de la base), n'entraînant pas de modification sensible des résultats.

L'exercice a permis d'obtenir des données originales, pour 6 appareils, dans une gamme de concentration très large allant du bruit de fond (< 10 µg/m^3) à plus de 140 µg/m^3, en passant par la valeur limite journalière (directive européenne) de 50 µg/m^3.

La Figure 1 présente l'intervalle de confiance de reproductibilité obtenu d'une part sans le système de distribution, puis d'autre part, avec le système de distribution (avec et sans dopage).
La Figure 2 présente les même résultats mais en relatif (%), en distinguant les quatre jeux de données.

Les résultats montrent que l'utilisation d'un système canalisé permet d'obtenir un intervalle de confiance réduit : l'absence d'un système canalisé correspond en effet à des valeurs absolues (Figure 1) et relatives (Figure 2) plus importantes, notamment au dessous de 20 µg/m^3.
Les fluctuations de la concentration en air ambiant dans l'espace, sur le toit de la station de mesure, seraient suffisamment importantes pour créer localement des différences perceptibles entre les prélèvements des différents appareils. L'amélioration apportée par le système canalisé proviendrait du fait qu'il prélève la matrice d'intercomparaison à un point unique, pour ensuite la répartir de manière identique à l'ensemble des participants. Les différences constatées entre les données « air ambiant » et « ambiant pulsé » correspondraient donc à une différence de qualité de la matrice d'intercomparaison, plus adaptée car plus homogène en mode canalisé.

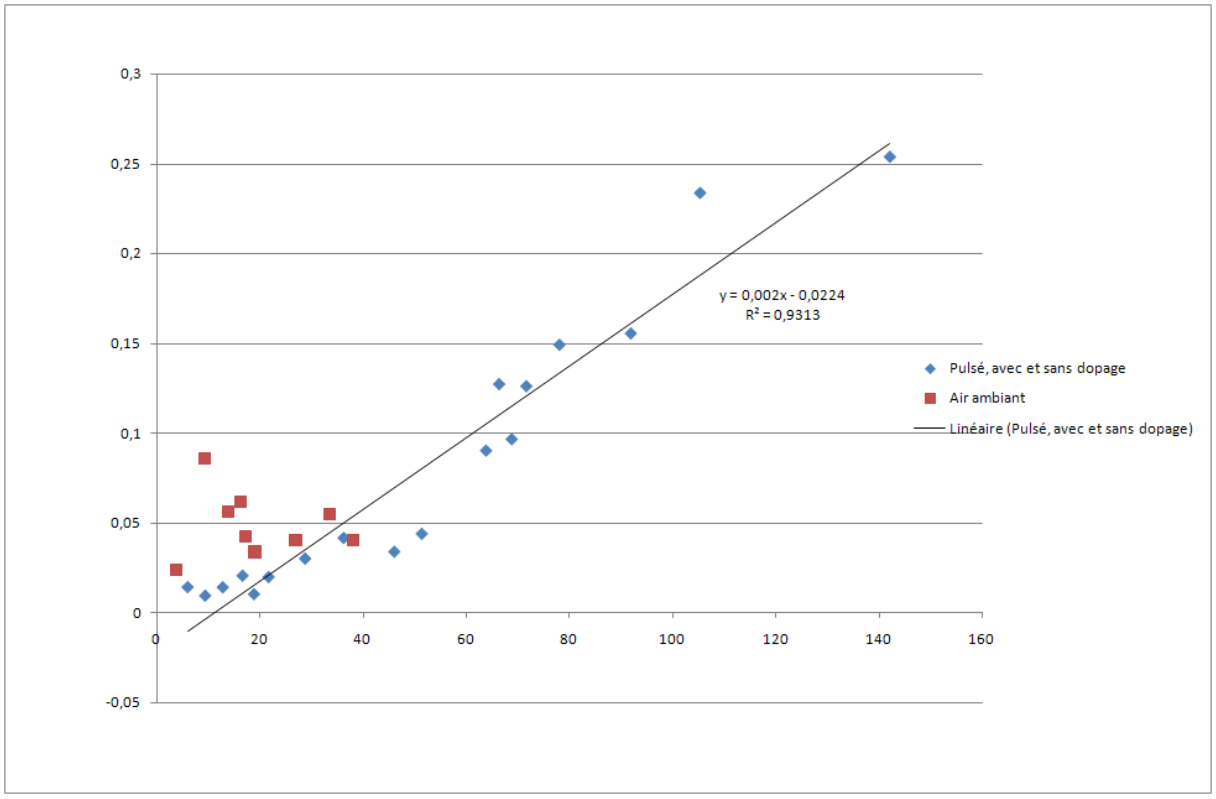

Figure 1 : intervalle de confiance absolu – comparaison avec et sans système de distribution.

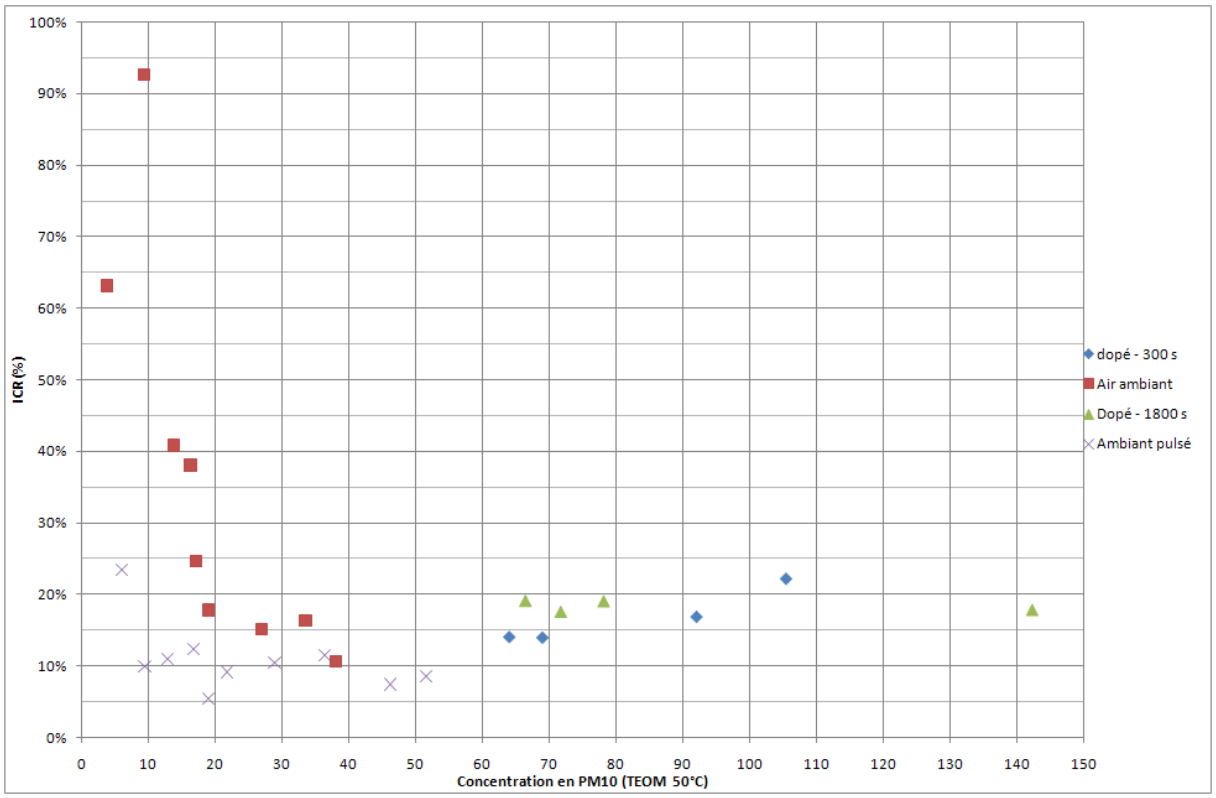

Figure 2 : intervalle de confiance relatif – présentation des 4 groupes de données.

Par conséquent, il convient de privilégier les résultats de l'exercice obtenus avec un <u>système canalisé</u> :

- L'intervalle de confiance observé en système canalisé, présente une relation linéaire avec la concentration massique (Figure 1) ; si nous faisons abstraction des concentrations inférieures à 10 µg/m^3, pour lesquelles la microbalance atteint sa limite de détection, nous relevons un intervalle de confiance inférieur à 25 %.

  - Il convient de séparer deux groupes de données. L'intervalle de confiance est d'environ 10 % dans la gamme allant de 10 à 50 µg/m^3 environ ; dans ce cas, le générateur de particules n'est pas utilisé. On obtient par contre une valeur moyenne de 20% environ dans la gamme supérieure à 60 µg/m^3, qui correspond à l'utilisation du générateur. Ces résultats indiquent que l'usage du générateur pourrait provoquer une certaine dispersion des observations entre les appareils ; afin de répondre à cette question, il conviendrait tout d'abord de chercher à obtenir un recouvrement de ces deux modes d'utilisation du système, à compter par exemple de 40 µg/m^3.

La directive européenne 2008/50/CE exige que l'intervalle de confiance associé à la mesure des PM10 ne dépasse par le plafond de 25% au niveau de la valeur limite journalière (50 µg/m^3). Les microbalances utilisées lors l'exercice rapporté ici, ne mesurent pas la fraction PM10 au sens de la directive européenne, mais la fraction PM10 portée à une température de 50°C.
L'exigence en matière d'intervalle de confiance reste toutefois pertinente, et a été nettement respectée lors de cet exercice (10 % environ).

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'INERIS a développé, dans le cadre du LCSQA, un système d'enrichissement de l'air en particules, visant à réaliser des exercices d'intercomparaison de type PM10 et PM2,5.
Un premier exercice a été mené en 2008, rassemblant 6 participants équipés de microbalances TEOM PM10 fonctionnant à 50°C.

Les résultats obtenus ont permis de déterminer l'intervalle de confiance de ce panel, pour des concentrations allant du bruit de fond jusqu'à 140 µg/m^3.
Le système atteint donc très largement son objectif principal, qui était de permettre la réalisation d'exercices dans une gamme de concentration incluant et dépassant la limite journalière réglementaire de 50 µg/m^3.

Par ailleurs, cet exercice a permis de montrer la capacité de ce système de dopage, à fonctionner sur le terrain durant plusieurs semaines.

Ce système permet de fournir une matrice plus homogène que celle rencontrée lors des exercices en air ambiant (non équipés d'un système de distribution).

Le panel de microbalances TEOM 50°C, respecte l'exigence de la directive européenne en matière d'intervalle de confiance.

Un certain nombre de points restent à améliorer, parmi lesquels la stabilité et la répétabilité de l'organe de génération de particules, ainsi que sa durée de mise en régime.
Il serait également nécessaire de permettre systématiquement la détermination, *a minima* pour un participant, de la dispersion intra-laboratoire (écart-type de répétabilité).
Une réflexion pourrait par ailleurs être menée afin de permettre la mise en œuvre, au sein du panel, de la méthode de référence (méthode gravimétrique EN-12341).
Enfin, un enjeu sera désormais de mettre cet outil au service des techniques jugées équivalentes à la méthode de référence, à savoir par exemple le TEOM-FDMS ou la jauge Beta-RST.

REFERENCES

- Fraboulet, 2009] - " Développement d'un système de dopage « PM » : premiers essais », I. Fraboulet, O. Le Bihan, N. Karoski, D. Calabrese, C. Froment, A. Dermigny, CFA, Paris.

- [ISO 5725-2] – « Application de la statistique – Exactitude (jutesse 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 », NF ISO 5725-2, indice X 06-041-2, décembre 1994.

- [XP X43-331] - X43-331 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. ICS : 13.040.40 - mai 1996

REMERCIEMENTS

Ce travail a été financé par le laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air (LCSQA). Les auteurs remercient les différentes AASQA ayant participé à cet exercice, à savoir Air Normand, Atmo Picardie, Atmo Nord-Pas de Calais, Lig'Air, Qualit'air Corse. Ils remercient également J. Poulleau, C. Raventos et C. Bressot (INERIS) pour leur contribution au niveau du traitement des données, ainsi que la société LNI pour son apport sur la génération de particules.